

Thèse

Pour obtenir le grade de **Docteur de l'Université de Lille**

En spécialité **Electronique, photonique**

Ecole doctorale ENGSYS-632

Présentée par

Roman BUISINE

Préparée à l'Institut d'Electronique, de Microélectronique et de Nanotechnologies (IEMN)

Métasurfaces désordonnées pour l'absorption aux longueurs d'onde infrarouges

Soutenue le 10 juin 2024 devant le jury composé de :

Rapporteurs	MCF Alexandre BARON, HDR	CRPP, Université de Bordeaux
	DR Christian SEASSAL, HDR	INL, Université de Lyon
Président du jury	Pr. Emmanuel CENTENO	IP, Université Clermont Auvergne
Examineurs	MCF Samira KHADIR	CRHEA, Université Côte d'Azur
	Pr. Olivier VANBESIEN	IEMN, Université de Lille
Codirecteur	Pr. Eric LHEURETTE	IEMN, Université de Lille
Invité	Pr. Yan PENNEC	IEMN, Université de Lille

Table des matières

Chapitre I : Contexte de la thèse.....	10
I1 Introduction.....	10
I2 Définitions.....	10
I21 Métamatériaux et métasurfaces	10
I22 Plasmons de surface	14
I221 Plasmons de surface propagatifs.....	14
I222 Plasmons de surface localisés	15
I23 Distributions désordonnées.....	16
I231 Processus ponctuel binomial	16
I232 Perturbation d'un réseau périodique carré initial.....	18
I3 État de l'art.....	20
I31 Absorption dans les métasurfaces Métal Isolant Métal (MIM).....	20
I311 Domaines et exemples d'application en micro-ondes.....	20
I312 Domaines et exemples d'application en optique.....	28
I32 Métasurfaces MIM désordonnées	31
I321 Effets du désordre de position sur le comportement des MS	31
I322 Ingénierie du désordre dans les MS.....	39
I323 Procédés de fabrication spécifiques au désordre	44
I4 Présentation du projet ANR RANDOM.....	45
I5 Conclusion.....	48
Chapitre II : Conception et simulation des métasurfaces	50
II1 Introduction	50
II2 Présentation de l'outil numérique.....	50
II21 Méthode des éléments finis (MEF)	50
II22 Choix du maillage dans CST	53
II23 Notion de super cellule	57
II3 Introduction du désordre dans la MS.....	61
II31 Distribution binomiale sans recouvrement.....	61
II32 Génération de distributions hyperuniformes	63
II33 Caractérisation des propriétés d'hyperuniformité des distributions par le facteur de structure	68
II4 Simulation des MS.....	75
II41 Conception de la MS périodique optimale.....	76
II42 Notions d'extinction et d'absorption	82
II43 Effet du désordre de position à densité constante	87
II44 Influence de la densité de résonateurs.....	100
II45 Comportement de la MS désordonnée en fonction de la polarisation	104
II5 Quelques pistes d'optimisation des MS désordonnées.....	107
II51 Conception et simulation de structures conglomerées	107
II52 Influence du diamètre d'exclusion.....	109
II6 Conclusion	110

Chapitre III : Fabrication et caractérisation des métasurfaces.....	112
III1 Introduction	112
III2 Description des étapes de fabrication	112
III21 Lithographie électronique	112
III22 Etapes d'évaporation sous vide.....	116
III23 Croissance de la couche diélectrique par procédé PECVD.....	118
III24 Méthode de lift off	119
III3 Génération des masques pour la lithographie électronique	120
III4 Caractérisation géométrique des échantillons	124
III41 Observation en microscopie électronique	124
III42 Détermination de l'épaisseur du diélectrique	127
III43 Analyse statistique des échantillons fabriqués	128
III5 Caractérisation optique des échantillons	131
III51 La spectroscopie de champ sombre en réflexion.....	131
III52 Observations à la caméra de phase.....	133
III53 Caractérisation des échantillons périodiques	134
III54 Caractérisation des échantillons désordonnés.....	140
III55 Analyse des écarts entre simulation et expérience	147
III56 Influence de l'épaisseur des piliers	150
III6 Conclusion.....	154

Remerciements

Je suis fier de présenter à travers ce manuscrit de thèse le fruit de mon travail tout au long des trois années que j'ai passées à l'IEMN. J'ai beaucoup appris sur le sujet passionnant des métamatériaux, que je souhaite approfondir dans la suite de mes recherches. Le travail de thèse est une formidable opportunité d'apprendre, car elle offre la possibilité de s'approprier un sujet par la pratique sur une longue période auprès de chercheurs expérimentés, afin d'aboutir à des résultats novateurs. C'est un travail exigeant qui requiert de faire preuve d'initiative, de rigueur, et de fournir un effort constant tout au long de la thèse malgré les difficultés. C'est donc un véritable défi que je suis fier d'avoir relevé. Toutefois, surmonter les difficultés est le résultat d'un travail d'équipe. Je souhaite donc remercier les personnes qui m'ont aidé dans cette mission.

Tout d'abord, je souhaite témoigner ma gratitude envers mes directeurs de thèse Eric Lheurette et Yan Pennec, pour avoir élaboré le projet RANDOM dans lequel s'inscrit ma thèse, et pour m'avoir fait confiance pour travailler sur le sujet. Je remercie tout particulièrement Eric pour m'avoir aidé, tant sur le plan scientifique qu'organisationnel, malgré ses responsabilités de chef d'équipe et de directeur du GDR Ondes, et pour m'avoir poussé à donner le meilleur de moi-même. Je remercie également Yan Pennec pour m'avoir encadré jusqu'à la soutenance. Cette étape est importante pour la suite de mon projet professionnel et en cela je leur dois beaucoup.

Je souhaite aussi remercier l'ensemble des membres du jury de ma soutenance, pour avoir témoigné leur intérêt pour mon travail de recherche et d'y avoir consacré du temps. Je remercie Christian Seassal et Alexandre Baron pour avoir accepté le travail de rapporteur, et Emmanuel Centeno d'avoir présidé le jury. Je remercie enfin Samira Khadir et Olivier Vanbésien pour avoir endossé le rôle d'examineur. Les remarques ou critiques qu'ils m'ont faites durant nos échanges ont été enrichissantes et prouvent une lecture attentive de mon travail.

Je remercie particulièrement les autres membres de l'équipe Sublambda, notamment Olivier Vanbésien, avec qui j'ai travaillé étroitement et qui m'a été d'une aide précieuse, ainsi que Ludovic Burgnies pour sa grande disponibilité et pour son souci du détail dans les réponses durant nos échanges. Je veux aussi témoigner ma reconnaissance aux collègues du laboratoire qui ont apporté leur contribution, notamment les ingénieurs de salle blanche Yves Deblock, Christophe Boyaval, François Vaurette et Marc Dewitte. A travers David Le Guilcher, je souhaite enfin remercier le service informatique.

Ce travail a été une collaboration entre des personnes de différents laboratoires, que je remercie vivement pour leur contribution et les idées qu'ils ont apportées. Je remercie Benoît Cluzel et Thibault Deletang pour leur travail expérimental en optique, et Bernard Bonello pour la partie acoustique, et enfin David Dereudre pour l'aspect mathématique du projet.

Je veux aussi souligner le rôle capital du CNRS et de l'ANR pour le cadre financier et matériel qui m'a été mis à disposition.

Je suis heureux d'avoir fait la connaissance des doctorants et des post-doctorants qui ont travaillé au laboratoire pendant ma période de thèse. Je pense en premier lieu aux doctorants de mon équipe, les deux Ali et Rami, qui ont contribué à mon intégration au sein du laboratoire, et m'ont transmis leurs connaissances. Je remercie aussi tous les autres qui sont devenus aussi des amis et avec qui j'ai partagé de nombreux moments pendant ma thèse. Je ne peux pas citer tout le monde, mais je suis sûr que vous vous reconnaîtrez. A bientôt à tous et bonne chance à ceux qui soutiendront dans le futur.

Enfin, j'ai une pensée toute particulière à mes amis de longue date et à ma famille, qui m'ont soutenu pendant les moments difficiles. Leur soutien a été essentiel et j'espère être dans le futur à la hauteur de ce qu'ils ont fait pour moi. J'ai été touché de pouvoir partager le moment de la soutenance avec vous.

Elsa, que notre vie entière, soit remplie de moments desquels nous serons fiers, qui compteront longtemps. Et alors l'évidence, que notre relation aura été féconde, apparaîtra clairement !

Enfin, je dédie spécialement ce travail à mes grands-parents paternels, Renée et Roger.

Cher lecteur, merci de porter attention à mon travail. Je te souhaite une bonne et fructueuse lecture.

Abréviations et principaux symboles utilisés pour les grandeurs physiques

Abréviations :

MIM : Métal-Isolant-Métal

MM : Métamatériau

MS : Métasurface

MA : Méta-atome

EM : Electromagnétique

VA : Variable aléatoire

PF : Port de Floquet

TE : Transverse Electrique

TM : Transverse Magnétique

PSP/PSL : Plasmon de Surface Propagatif / Plasmon de Surface Localisé

MEB : Microscope Electronique à Balayage

PML : Perfectly Matched Layer

MEF : Méthode des Eléments Finis

MCMC : Markov Chain Monte Carlo

EDP : Equation aux Dérivées Partielles

NP : Nanoparticules

CL : Conditions aux Limites

Cplo : Cellules par Longueur d'Onde

OM : Opto-mécanique

WR : Wood/Rayleigh

Symboles des grandeurs :

Tout au long du manuscrit, les grandeurs vectorielles seront écrites en gras pour les différencier des grandeurs scalaires

E : Vecteur champ électrique

H : Vecteur champ magnétique

P : Vecteur de Poynting

k : Vecteur d'onde

S : facteur de structure

μ : Perméabilité relative

ε : Permittivité relative

ρ : Densité de piliers

σ : Ecart-type du désordre

λ : Longueur d'onde

φ : Phase de l'onde réfléchie

Résumé

L'emploi de désordre dans la position des méta-atomes permet d'améliorer les propriétés de rayonnement électromagnétique des métasurfaces par rapport aux configurations périodiques. D'autre part, les techniques émergentes d'auto-assemblage peuvent être mises à profit pour réduire le temps et le coût de leur fabrication. Cette thèse concerne l'étude du désordre de position au sein d'une métasurface absorbante, dans le domaine du proche infrarouge. Elle repose sur l'agencement de résonateurs métal-isolant-métal connus pour favoriser la localisation du champ électromagnétique par couplage de plasmons localisés. Le désordre est introduit par déplacement des méta-atomes à partir d'une configuration périodique initiale, par une quantité aléatoire d'amplitude contrôlable. L'absorption des métasurfaces a été calculée par la méthode numérique des éléments finis grâce au logiciel de simulation CST Microwave Studio®. Les résultats de simulation montrent que la quantité de désordre peut être ajustée en fonction de la densité de résonateurs pour optimiser le niveau d'absorption. En particulier, les métasurfaces de forte densité et très désordonnées présentent des niveaux d'absorption assez élevés sur une large bande de fréquence. Ces propriétés ne peuvent pas être obtenues par les configurations périodiques de résonateurs. Ces observations ont été testées expérimentalement sur des échantillons fabriqués par lithographie électronique et caractérisés par ellipsométrie et par traitement des images obtenues par microscopie à balayage, dans l'environnement de salle blanche de l'Institut d'Electronique, de Microélectronique et de Nanotechnologies (IEMN). Par des mesures en champ sombre et par caméra de phase réalisées dans le cadre d'une collaboration avec l'Institut Carnot de Bourgogne, nous avons pu mesurer qualitativement les propriétés d'absorption des métasurfaces en fonction de la quantité de désordre et de la densité de méta-atomes. Nous avons ainsi mis en évidence expérimentalement l'intérêt de travailler avec des métasurfaces denses et désordonnées, ce qui confirme les résultats numériques.

Introduction générale

Cette thèse s'est déroulée au sein de l'équipe SUBLAMBDA de l'Institut d'Electronique, de Microélectronique et de Nanotechnologies (IEMN), en collaboration avec l'Institut Carnot de Bourgogne et l'Institut des Nanosciences de Paris. Elle a été financée par l'Agence Nationale de la Recherche (ANR). Le travail a consisté à étudier numériquement et expérimentalement les effets du désordre dans une métasurface absorbante dans l'infrarouge en configuration métal-isolant-métal pour le domaine infrarouge.

Objectifs de la thèse

La thématique des métamatériaux est un domaine de recherche né au début des années 2000. Malgré de fortes promesses dans la manipulation des ondes électromagnétiques et acoustiques qui permettent d'envisager leur application notamment dans les technologies de télécommunication, les métamatériaux n'ont pas encore imprégné massivement l'industrie. Néanmoins, cette thématique très riche continue de motiver de nombreuses recherches. A titre d'exemple, l'ambition du projet RANDOM, dans lequel s'inscrit cette thèse, est d'étudier les mécanismes de couplage entre des ondes optique et phononique au sein d'une métasurface désordonnée.

Ce couplage opto-mécanique est possible dans les structures périodiques, qu'on appelle des cristaux phoXoniques (photoniques et phononiques). Ces structures possèdent des propriétés intéressantes, mais il est à envisager que l'utilisation de structures désordonnées permette d'optimiser l'efficacité du couplage. Les métasurfaces, en raison de leur structuration sous-longueur d'onde, permettent de s'affranchir de l'arrangement cristallin et ouvrent des perspectives de co-localisation d'ondes optiques et phononiques. Cette thèse va s'attacher à étudier le comportement de la métasurface du point de vue optique en présence d'un désordre hyperuniforme. L'objectif sera de concevoir une métasurface qui absorbe le maximum de champ électromagnétique incident, de manière à envisager l'optimisation d'un couplage opto-mécanique.

Organisation du manuscrit

Ce manuscrit est découpé en trois chapitres.

Dans le premier chapitre, nous rappellerons les concepts physiques essentiels que sont les métamatériaux, les phénomènes plasmoniques et les différents types de désordre, notamment hyperuniforme. Ensuite, nous présenterons un état de l'art sur l'absorption des ondes électromagnétiques dans les métasurfaces en configuration métal-isolant-métal, tant aux fréquences microondes qu'aux fréquences optiques. Nous expliquerons le rôle du désordre à la fois sur les conditions d'interférence du champ rayonné par les résonateurs métal-isolant-métal et sur les conditions de couplages multiples entre résonateurs individuels. A la lumière de ces deux phénomènes, nous interpréterons les propriétés d'absorption obtenues dans des métasurfaces métal-isolant-métal. Enfin, nous décrirons différentes

techniques d'auto-assemblage employées dans la littérature pour fabriquer les métasurfaces désordonnées à faible coût.

Dans le second chapitre, nous exposerons tout d'abord les différents outils qui nous ont permis d'obtenir les résultats numériques : nous introduirons la méthode des éléments finis et sa mise en place, ainsi que les procédures pour introduire le désordre, et les outils de caractérisation des distributions désordonnées. Ensuite, nous décrirons les effets du désordre en comparaison avec la situation périodique de référence. Enfin, nous présenterons des simulations pour éclairer les mécanismes physiques qui expliquent les comportements observés en présence de désordre.

Dans le troisième chapitre, nous détaillerons le procédé de fabrication et ses contraintes, puis la conception ainsi que les outils de caractérisation des deux échantillons. Nous exposerons ensuite le principe de fonctionnement des dispositifs expérimentaux employés : la spectroscopie champ sombre et la caméra de phase. En confrontation avec les résultats numériques, les mesures expérimentales de l'absorption en fonction du désordre seront discutées. Nous terminerons par mettre en évidence numériquement l'intérêt d'intégrer l'épaisseur des piliers dans la conception de futurs échantillons.

Chapitre I : Contexte de la thèse

I1 Introduction

Dans ce chapitre, nous introduirons les concepts physiques sur lesquels nous nous appuyerons pour interpréter les effets du désordre dans les métasurfaces : les métamatériaux, les effets plasmoniques et les différents types de désordre. Ensuite, nous décrirons l'état de l'art des mécanismes d'absorption dans les métasurfaces métal-isolant-métal, tant aux fréquences microondes qu'optiques. Nous traiterons aussi des mécanismes physiques sur lesquels agit le désordre lorsqu'il est introduit dans la position des méta-atomes. Ceci nous permettra d'interpréter les résultats des travaux de la littérature qui ont utilisé le désordre comme degré de liberté pour améliorer les performances d'absorption des métasurfaces métal-isolant-métal. Enfin, nous verrons comment le relâchement des contraintes sur la position des méta-atomes dans les métasurfaces désordonnées a pu permettre dans plusieurs travaux de recherche, le recours à des techniques d'auto-assemblage moins coûteuses pour fabriquer ces métasurfaces. Munis de ces éléments de compréhension, nous terminerons en justifiant l'intérêt d'employer des structures désordonnées pour réaliser du couplage opto-mécanique, objectif du projet RANDOM dans lequel s'inscrit cette thèse.

I2 Définitions

I21 Métamatériaux et métasurfaces

La recherche dans le domaine des métamatériaux (MM) consiste à créer des matériaux de propriétés innovantes par structuration de la matière. Cet objectif n'est pas purement théorique mais possède un intérêt pratique évident car la plupart des matériaux qu'on peut retrouver dans la nature ont des propriétés déterminées par les conditions de formation de ces matériaux : elles sont donc restreintes. En particulier, en ce qui concerne leurs propriétés électromagnétiques, les matériaux naturels présentent une réponse magnétique très limitée, et la plupart des matériaux naturels sont ainsi caractérisés par une perméabilité $\mu \sim 1$ aux fréquences supérieures au THz [1]. Dans les tissus vivants, les propriétés peuvent être plus variées : par exemple, les yeux des homards sont ainsi constitués de matériaux à indice négatif [2], mais ces matériaux ne sont pas exploitables pour des raisons évidentes, et il est donc important de pouvoir réaliser industriellement des matériaux aux propriétés souhaitées pour remplir des rôles spécifiques au sein d'applications particulières.

Pour que le MM soit perçu de manière homogène par une onde incidente, il est nécessaire que les motifs, ainsi que l'espace entre ces motifs, soient petits devant la longueur d'onde. Ces ondes peuvent être électromagnétiques (EM) ou acoustiques. De cette façon, on peut traiter la structure par des relations macroscopiques moyennées qui ne tiennent pas compte des variations locales du champ associé à l'onde à l'intérieur du matériau, même si ces variations sont importantes. Ainsi, on peut la plupart du temps caractériser les MM EM par une permittivité ϵ et une perméabilité μ effectives, et par un module d'élasticité isostatique effectif K et une densité fluide de masse effective ρ , dans le cas des MM

acoustiques. Ces grandeurs ne sont définies que pour des équations macroscopiques moyennées spatialement, mais elles peuvent néanmoins s'exprimer localement et dépendre des coordonnées de l'espace. Les inclusions présentes dans l'ensemble du MM sont appelées les méta-atomes (MA) par analogie avec les atomes de la matière classique. On distingue les MM des métasurfaces (MS), qui sont l'équivalent en deux dimensions des MM, dans le sens où leur épaisseur est de plus négligeable devant la longueur d'onde. La *Figure 1* montre un schéma de MA sur une MS.

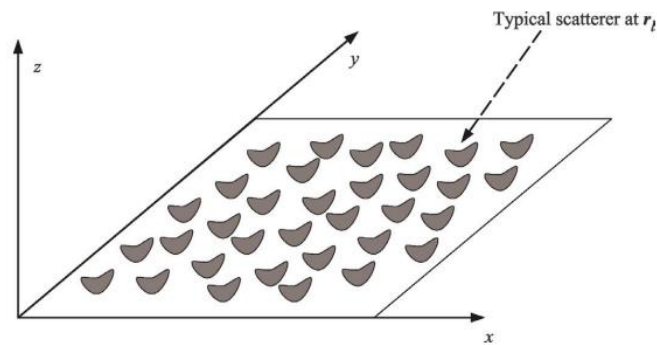


Figure 1 Schéma des méta-atomes sur la surface d'une métasurface. Reproduit de [3].

Ce schéma montre l'organisation typique d'une MS. Les MM sont construits sur le même principe dans la direction verticale z (voir *Figure 1*). L'intérêt d'employer des MA est que les propriétés physiques du MM sont déterminées par les MA. Si l'on est capables de choisir la forme, la taille et le matériau constitutif des MA, on dispose ainsi d'un moyen de choisir les propriétés des MM avec une grande flexibilité. Nous verrons dans le contexte de l'électromagnétisme, comment ces différents paramètres permettent de choisir non seulement les propriétés des MM, mais aussi le domaine de longueur d'onde du spectre dans lequel on souhaite obtenir ces propriétés.

L'obtention des propriétés souhaitées pour un MM revient donc à concevoir et à fabriquer des MA et, comme nous allons le voir par la suite, à considérer adéquatement leurs interactions au sein du MM. Une étape indispensable est donc de se doter de MA possédant des propriétés intéressantes pour pouvoir ensuite les associer dans un matériau. Il existe une variété infinie de MA différents, suivant leur matériau constitutif et leur forme géométrique, mais il existe des MA très employés du fait de leur simplicité ou leur utilité dans de très nombreux cas de figure.

Dans le domaine électromagnétique, il est notamment important de fabriquer des MA magnétiques, car la matière naturelle est inerte magnétiquement aux fréquences optiques. La plupart du temps, la stratégie choisie est celle d'exploiter la résonance EM des MA pour induire un comportement magnétique. Historiquement, un des MA magnétiques les plus importants consiste en un assemblage de deux boucles métalliques coupées, qu'on appelle des résonateurs à anneaux fendus (ou split ring resonators, SRR en anglais). Le comportement magnétique est dicté par le choix des paramètres géométriques des anneaux. En particulier, la fréquence de résonance de l'ensemble des deux anneaux est liée à ces paramètres géométriques, autour de laquelle une réponse magnétique μ différente de 1 a lieu. Ce MA a une importance historique dans le domaine des MM car c'est ce MA qui a été utilisé pour réaliser le premier

MM à indice négatif [4] dans le domaine microondes. Cependant, l'emploi de ce MA est limité pour des applications à plus grandes fréquences, à cause de l'évolution des propriétés des métaux [5] et en raison de la difficulté à exciter la résonance des anneaux fendus par la composante magnétique du champ EM si ceux-ci sont fabriqués sur un substrat. En effet, pour une onde plane en incidence normale, le champ magnétique ne peut être orienté que perpendiculairement par rapport au plan des anneaux. Ainsi, la résonance magnétique n'est possible que grâce au couplage des anneaux avec la composante électrique du champ EM [6], et non par excitation par le champ magnétique directement, ce qui diminue l'efficacité de l'excitation [1]. Il a donc été envisagé d'autres types de MA magnétiques. En particulier, les structures de type métal-isolant-métal (MIM) dans lesquelles deux motifs métalliques sont séparés par une couche d'isolant d'épaisseur sub-longueur d'onde, sont très utilisées pour introduire du magnétisme de manière artificielle à partir de matériaux non magnétiques. De manière équivalente, l'un des deux motifs peut être remplacé par un plan de masse uniforme pour former une image miroir de l'autre motif. Cette configuration est en général préférée pour des raisons de facilité de fabrication. Le couplage entre le MA et son image par un plan de masse métallique introduit une boucle de courant lorsque cet ensemble est excité par un champ EM incident, ce qui crée un champ magnétique dans la partie isolante. Ce mécanisme existe pour n'importe quelle géométrie du motif de la couche supérieure, comme des tiges [7], ou encore des piliers, ce qui rend cette configuration flexible. Nous reviendrons plus en détail sur cette structuration, que nous avons utilisée dans le cadre de cette thèse.

Même si la fabrication des MM peut emprunter des techniques d'auto-assemblage (approche « bottom up »), la nécessité de contrôler précisément les tailles et positions des MA tend à privilégier les procédés plus conventionnels inspirés de la micro et nano électronique (procédé « top down »). C'est cette dernière approche que nous emploierons dans cette thèse et que nous allons détailler brièvement. La définition des MA se fait en général par l'intermédiaire d'une résine qui est ensuite exposée à un faisceau optique ou électronique, puis révélée chimiquement. On parle dans ce cas de lithographie optique ou électronique (EBL, electron beam lithography en anglais) qui sont des procédés appliqués sur toute la surface. On peut aussi travailler localement par bombardement d'ions accélérés comme dans la technique du faisceau d'ions focalisés (FIB, focused ion beam). Enfin, il est possible d'inscrire les motifs mécaniquement par l'emploi d'un moule dans la technique de nanoimpression (nanoimprint lithography, NIL). Dans chaque cas, seule une petite épaisseur de résine peut être usinée. Cela oblige bien souvent à produire les MM couche par couche, ce qui est un travail long et coûteux. Néanmoins, le contrôle et la précision des techniques de fabrication top down permettent de fabriquer des nanostructures avec une grande flexibilité. Dans cette thèse, nous aurons recours à l'EBL pour fabriquer nos échantillons.

Pour pallier entre autres ces difficultés, la recherche s'est tournée vers l'étude des MS. Ce type de MM est intéressant car d'une part les exigences de fabrication sont réduites, et en outre la faible épaisseur est un avantage pour l'intégration de ces MS dans des circuits optiques grâce à leur faible volume. Les MS sont des structures qui peuvent manipuler la propagation des ondes EM, mais il s'agit d'un nouveau paradigme vis-à-vis des MM dans la mesure où la manipulation des ondes ne se fait pas par accumulation

de la phase par propagation à l'intérieur du matériau, mais plutôt par saut de phase à l'interface avec la MS, grâce à la structuration des MA. En outre, la faible longueur du chemin optique parcouru par l'onde dans la MS permet d'espérer un autre avantage des MS par rapport à leur équivalent 3D, qui est la réduction des pertes à l'intérieur des matériaux.

Ce nouveau paradigme nécessite de développer des outils spécifiques pour comprendre et prévoir le comportement de ces MS. Par exemple, la modélisation des MS par une permittivité et une perméabilité effective est moins rigoureuse que dans le cas 3D, précisément parce que ces grandeurs sont définies pour un matériau dont chaque dimension est grande devant la longueur d'onde [8]. D'ailleurs, les méthodes d'extraction des paramètres électromagnétiques, par exemple [9] nécessitent de connaître précisément l'épaisseur, grandeur qui n'est justement pas bien définie pour une MS.

La possibilité de manipuler la trajectoire d'une onde incidente sans accumulation de phase par propagation a été introduite dans un article publié en 2011 qui a montré comment une MS permettait de changer les conditions aux limites entre deux milieux, ce qui peut se formuler selon les lois de Snell-Descartes généralisées en une dimension par exemple [10] :

$$n_t \sin(\theta_t) - n_i \sin(\theta_i) = \frac{\lambda}{2\pi} \frac{d\phi}{dx} \quad (1)$$

$$\sin(\theta_r) - \sin(\theta_i) = \frac{\lambda}{2\pi n_i} \frac{d\phi}{dx} \quad (2)$$

La *Figure 2* définit les grandeurs qui interviennent dans ces deux équations, λ est la longueur d'onde du champ EM incident, θ_r l'angle du rayon réfracté.

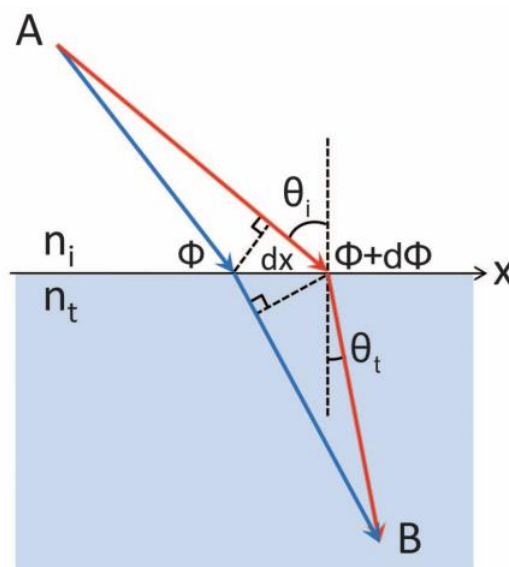


Figure 2 Lois de Snell-Descartes généralisées en présence d'une interface anisotrope. Reproduit de [10]

Les grandeurs à gauche du signe égal sont celles des équations de Snell-Descartes classiques, dans lesquelles le membre de droite est nul. On voit apparaître un terme supplémentaire à droite du signe

égal, où $d\phi/dx$ s'appelle le gradient de phase de la MS. La grandeur ϕ correspond à la phase du champ réfléchi à la position x de la MS, λ est la longueur d'onde du champ EM. Les MS conçues avec ce principe sont ainsi appelées les MS à gradient. Lorsque le gradient est constant, c'est-à-dire lorsque la variation de phase est linéaire, la MS dévie un rayonnement incident avec un certain angle par rapport à la MS dans une direction fixe déterminée par la valeur du gradient. Ce gradient de phase est généré par une variation graduelle de la géométrie des MA.

I22 Plasmons de surface

Les effets plasmoniques sont des phénomènes d'interface entre des matériaux diélectriques et métalliques aux fréquences optiques. Ils sont donc associés à des pertes aux fréquences optiques dues à la dissipation ohmique dans les métaux, mais le confinement des ondes à l'interface entre les deux milieux isolant et métallique les rend très intéressants pour la manipulation des ondes EM, pour concevoir des structures de guidage par exemple. C'est la raison pour laquelle de nombreux MM optiques utilisent des métaux.

Les plasmons correspondent à des modes de propagation EM dus au mouvement des électrons libres dans le métal. Les métaux sont associés à une pulsation plasma notée en général ω_p qui correspond à la pulsation propre d'oscillation du plasma d'électrons. Cependant, ce mécanisme ne participe pas à l'interaction lumière/matière car l'oscillation est longitudinale et ne peut être excitée par un rayonnement incident. En revanche, les plasmons de surface, mouvement des électrons à l'interface entre un métal et un diélectrique peuvent se coupler à un rayonnement incident. Il existe deux types de plasmons de surface : les plasmons de surface propagatifs (PSP) et localisés (PSL).

I221 Plasmons de surface propagatifs

Les plasmons de surface propagatifs correspondent au déplacement des électrons d'un métal à l'interface avec un matériau diélectrique. La relation de dispersion qui relie le vecteur d'onde β du PSP dans sa direction de propagation au vecteur d'onde incident, s'exprime pour une onde incidente transverse magnétique par la relation [11] :

$$\beta = k_0 * \sqrt{\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}} \quad (3)$$

Dans cette équation, ϵ_1 désigne la permittivité du métal, ϵ_2 celle du diélectrique et $k_0 = \omega/c$ le vecteur d'onde de l'onde incidente. On trace en *Figure 3a*) le diagramme de dispersion du plasmon à une interface métal/isolant, pour deux isolants différents.

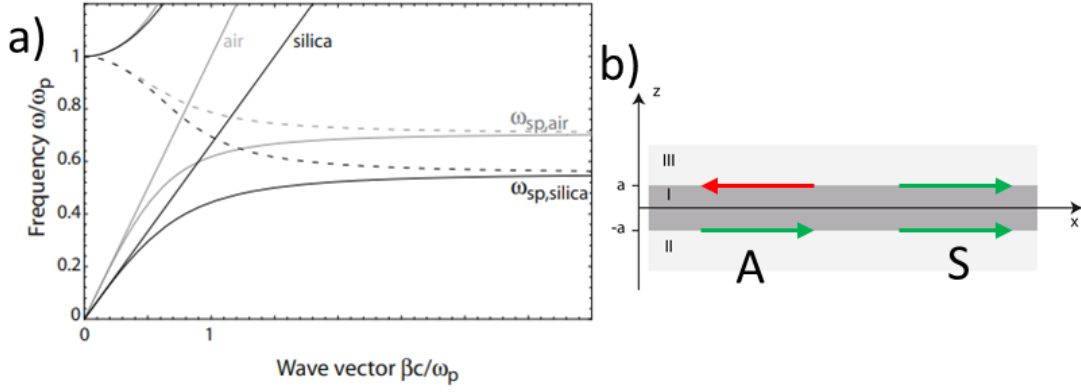


Figure 3 a) Diagramme de dispersion d'une interface métal/air et métal/SiO₂ b) Schéma de l'empilement des trois couches. Les flèches représentent la direction du champ E dans le cas du mode antisymétrique (associé à la lettre A), et symétrique (lettre S). Reproduit de [11]

Dans ce schéma, le métal est modélisé par une permittivité $\epsilon_1 = 1 - \omega/\omega_p$, et les diélectriques sont l'air ($\epsilon_2=1$) et le SiO₂ ($\epsilon_2=2,25$). On voit que lorsque $\omega \rightarrow \omega_{sp}$, $\beta \rightarrow \infty$. La pulsation ω_{sp} est appelée pulsation du plasmon de surface. Or,

$$k_{z1}^2 = \beta^2 - k_0^2 \epsilon_1 \quad (4)$$

$$k_{z2}^2 = \beta^2 - k_0^2 \epsilon_2 \quad (5)$$

Dans ces équations, $k_{z1,2}$ représentent les vecteurs d'onde transverses du PSP dans les deux milieux respectivement. On voit que $\beta \rightarrow \infty$ implique $k_{z1,2} \rightarrow \infty$. Autrement dit, à ω_{sp} , le champ électromagnétique associé au plasmon est extrêmement confiné à l'interface. C'est pourquoi on qualifie les PSP de plasmons de surface. Ce confinement est un grand avantage pour la manipulation des ondes EM.

Une configuration particulièrement intéressante est la configuration métal-isolant-métal (MIM) où deux interfaces plasmoniques sont mises en regard (voir schéma de la Figure 3b)). Si l'épaisseur du diélectrique est inférieure à la distance d'atténuation des plasmons, ceux-ci sont couplés. Dans ce cas, il existe notamment deux modes fondamentaux de propagation, un mode dit symétrique (la composante x du champ électrique est symétrique soit $E_x(z)=E_x(-z)$), et un mode antisymétrique ($E_x(z)=-E_x(-z)$), où E_x désigne la composante x du champ E . Les caractéristiques de propagation de ces modes sont dépendantes de l'épaisseur de diélectrique. La diminution de l'épaisseur de la couche isolante entraîne une augmentation du confinement aux interfaces, ce qui rend cette configuration très intéressante. Dans cette thèse, nous employons cette configuration pour réaliser une MS absorbante.

1222 Plasmons de surface localisés

Il existe aussi des effets plasmoniques se produisant à l'interface entre une surface métallique de longueur limitée, qu'on peut appeler une particule de métal, et son environnement diélectrique. Due à la taille finie de la particule, et contrairement au comportement plasmonique d'une interface d'extension infinie, l'excitation des électrons métalliques de la surface de métal est un phénomène non propagatif car les électrons sont confinés dans la particule : on parle alors de plasmon de surface localisé. Ces

structures ont en général un comportement résonant provenant des conditions de déplacement des électrons dans la particule, dont le mouvement est soumis à la force de l'excitation EM incidente et aux forces de rappel liées à la répartition des charges dans la particule de taille finie qui peuvent conduire à une situation de résonance.

Ainsi, en général, la fréquence de résonance dépend des dimensions de la particule et de sa forme. Pour une particule sphérique de métal de permittivité ϵ et de diamètre $d \ll \lambda$ plongée dans un environnement diélectrique de permittivité ϵ_d , la condition de la résonance fondamentale dite dipolaire a lieu à la fréquence qui satisfait la relation :

$$Re(\epsilon) = -2\epsilon_d \quad (6)$$

Si l'on modélise la permittivité du métal par un modèle de Drude, cette résonance se produit pour $\omega = \frac{\omega_p}{\sqrt{3}}$. Cette condition s'appelle condition de Fröhlich.

En résumé, les PSL présentent un double avantage : comme les PSP, ils sont localisés transversalement à des échelles sub longueur d'onde de part et d'autre de la surface plasmonique ; mais en outre, ils sont localisés longitudinalement à des échelles sub longueur d'onde dans les deux dimensions de la surface, si la taille du MA satisfait ce critère : les PSL sont donc localisés dans les trois dimensions de l'espace. Dans cette thèse, ces PSL nous intéressent particulièrement car nous les exciterons pour réaliser l'absorption du champ incident.

123 Distributions désordonnées

1231 Processus ponctuel binomial

Le premier processus que nous emploierons pour calculer la position des piliers sur la MS est un processus qui s'appelle le processus binomial. Il s'agit d'un processus aléatoire ponctuel. Il est d'une part aléatoire dans le sens où les positions des points calculées par ce processus sont non prévisibles et non déterministes, mais au contraire définies par une expérience aléatoire. Les expériences aléatoires sont simulables sur un ordinateur et sont implémentables dans tous les langages de programmation. Il s'agit d'autre part d'un processus ponctuel car chaque réalisation du hasard simulée par l'ordinateur est associée à une configuration de points sur la surface (x,y) , telle que l'application $N(A)$ qui compte le nombre de points dans un domaine borné A de \mathbb{R}^2 est une variable aléatoire finie.

Dans un domaine carré de côté D , un processus binomial est obtenu en fixant un nombre n de points à placer dans le domaine, et en plaçant successivement ces points de manière uniforme sur la surface. La position d'un point est donc indépendante de la position des autres. On qualifie ce processus de binomial car la variable $N(A)$ qui compte le nombre de points dans un domaine borné A suit une loi binomiale de paramètres $(n, Aire(A)/D^2)$. La propriété d'indépendance des positions des points induite par ce processus se retrouve également dans le processus de Poisson, processus bien connu pour représenter des processus complètement aléatoires sans aucune corrélation. Le processus de Poisson modélise ainsi

de manière adéquate de nombreux phénomènes physiques lorsque les évènements associés à ces phénomènes ne sont pas corrélés entre eux, comme la répartition de la position des gouttes de pluie au sol au cours du temps, les mutations de l'ADN en biologie, la désintégration des noyaux radioactifs, la position des défauts dans un matériau...

Le processus de Poisson est défini par deux conditions : d'une part, le nombre de points dans le domaine considéré est une variable aléatoire qui suit une loi de Poisson de paramètre λ , et d'autre part, le nombre de points dans deux sous-domaines disjoints du domaine considéré sont des variables aléatoires indépendantes. En fait, un processus binomial de n points est un processus de Poisson où l'on aurait fixé le nombre de points à n [12]. Ces deux processus ont donc des propriétés très voisines. Une caractérisation des configurations ponctuelles que nous utiliserons dans la suite est le facteur de structure. Le facteur de structure est un outil mathématique représentatif de l'organisation d'un ensemble d'objets dans l'espace. Dans notre cas, il s'agira de la position des centres des MA sur la MS. Le facteur de structure est donc une grandeur pertinente lorsqu'il s'agit de caractériser les propriétés d'un phénomène qui dépend de la configuration des positions d'objets physiques, ce qui sera le cas dans notre étude comme nous aurons l'occasion de le montrer par la suite. Par exemple, le facteur de structure intervient dans le calcul de la diffraction de rayons X par des cristaux. C'est dans ce domaine qu'il a été historiquement utilisé de manière systématique. Le facteur de structure est relié à la fonction de corrélation par paire $g_2(\mathbf{r})$ qui est proportionnelle au nombre de points localisés à la position \mathbf{r} d'un point de référence, moyenné sur l'ensemble des points de la distribution. La relation entre ces deux quantités est :

$$S(\mathbf{k}) = 1 + \rho * TF(h) \quad (7)$$

Dans cette expression, TF est la transformée de Fourier de la fonction vectorielle à deux dimensions $h = g_2(\mathbf{r}) - 1$. Pour un ensemble de N points en position \mathbf{r}_i , contenue dans une fenêtre carrée, une expression équivalente du facteur de structure de cette configuration est :

$$S(\mathbf{k}) = \frac{1}{N} \left| \sum_{i=1}^N e^{-j\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_i} \right|^2 \quad (8)$$

L'argument \mathbf{k} du facteur de structure est homogène à un vecteur d'onde, il est défini en pratique pour une configuration de points donnée par un ensemble de valeurs discrètes du vecteur d'onde $k_{x,y} \in \{2\pi n/D\}$, ou k_x et k_y sont les composantes du vecteur \mathbf{k} , n est un entier naturel non nul [13]. Pour une distribution de points périodique de période p de forme carrée, le facteur de structure est une succession de pics dits « de Bragg » positionnés en $k_{ij} = \frac{2\pi}{p} \sqrt{i^2 + j^2}$ pour le pic d'ordre i,j . A l'inverse, pour le processus binomial comme celui de Poisson, le facteur de structure vaut 1 pour toute valeur de \mathbf{k} , comme le montre la *Figure 4*. Il ne dépend pas de la densité de points du processus de Poisson c'est pourquoi le facteur de structure du processus binomial vaut également 1.

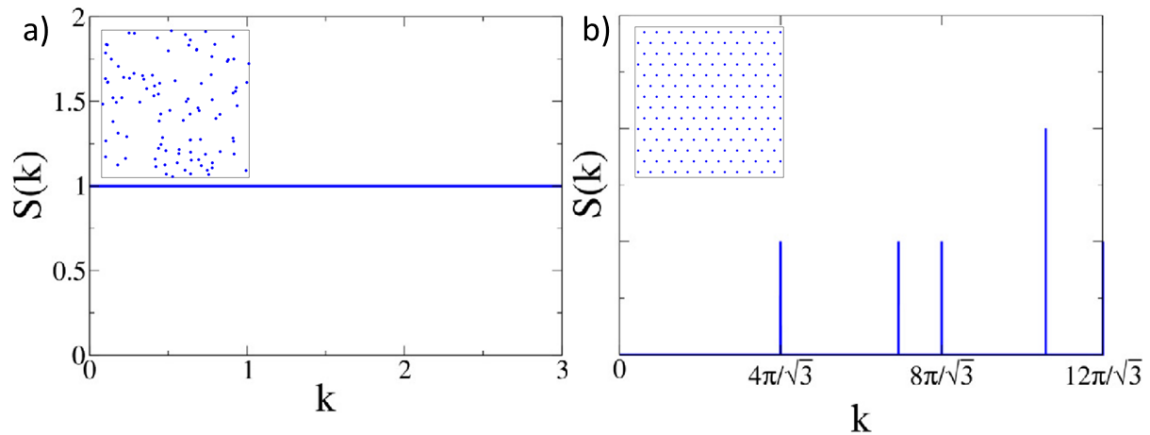


Figure 4 a) Facteur de structure d'une distribution de Poisson (une réalisation particulière est montrée en encart) et b) Moyenne angulaire du facteur de structure d'un réseau triangulaire (la distribution correspondante est représentée en encart). Reproduit de [14]

Cependant, nous introduirons une contrainte supplémentaire pour la génération des distributions, celle de non recouvrement des piliers entre eux. En effet, nous manipulons les piliers par la position de leur centre, mais les piliers ont une extension de diamètre d autour de ce centre. Nous imposerons que les piliers ne puissent pas se chevaucher, ce qui signifie que les centres ne peuvent se trouver à une distance inférieure à moins de d des autres centres. Cela change les caractéristiques de la distribution, notamment l'indépendance des positions qui n'est plus forcément respectée. Nous verrons dans la suite dans quelle mesure cette contrainte supplémentaire nous éloignera des propriétés des processus purement ponctuels, en fonction notamment de la densité des piliers sur la MS, essentiellement grâce à l'examen du facteur de structure.

Nous avons choisi dans cette étude le processus binomial pour générer du désordre sans corrélation plutôt que le processus de Poisson, car le premier permet de fixer le nombre de points dans la fenêtre d'observation, et ainsi de fixer la densité des MA dans la MS, ce qui est avantageux dans la mesure où la densité sera un paramètre important de notre étude.

I232 Perturbation d'un réseau périodique carré initial

Une deuxième stratégie que nous allons mettre en œuvre pour générer des configurations désordonnées de MA est la perturbation d'un réseau périodique carré initial. On se donne une période initiale, c'est à dire une densité de MA, et une loi de perturbation de ce réseau, contrôlée par un paramètre qui va caractériser la configuration obtenue. Ici, nous choisirons de perturber le réseau périodique en déplaçant chaque MA depuis sa position initiale en ajoutant à chaque coordonnée x et y une variable aléatoire suivant une loi normale centrée de variance σ^2 , notée $N(0, \sigma^2)$. Chaque configuration peut donc être caractérisée par un couple période/variance ou de manière équivalente densité/variance. On utilisera plus volontiers la valeur de σ par la suite, qui est homogène à une distance. La valeur de la variance permet de contrôler la quantité de désordre, car les déplacements des MA depuis leur position de départ augmentent lorsque σ augmente. Si $\sigma=0$, il n'y a aucun déplacement et la configuration résultante reste périodique. En revanche, si $\sigma \rightarrow \infty$, les déplacements deviennent arbitrairement grands, et ainsi il est à

prévoir que les propriétés de la configuration soient analogues à celles d'une configuration binomiale de même densité. Entre ces deux extrêmes, il existe un domaine de valeur du paramètre σ qui correspond à des configurations désordonnées ayant un certain degré d'ordre provenant de la position périodique initiale. Par exemple, dans le cas de faibles perturbations (comparativement à la période p du réseau initial), on est capable visuellement, à partir de la configuration obtenue, de savoir quelle était la position de chaque MA dans le réseau de départ.

Ce processus génère des distributions appartenant à une classe particulière de configurations aléatoires présentant un ordre partiel qu'on appelle les distributions hyperuniformes [15]. Parmi les distributions ayant un ordre partiel, les distributions hyperuniformes sont des configurations ayant la propriété supplémentaire que leur facteur de structure $S(\mathbf{k}) \rightarrow 0$ lorsque $|\mathbf{k}| \rightarrow 0$. Cela correspond à des configurations pour lesquelles les variations de densité sont faibles pour des grandes échelles de longueurs. Plus précisément, pour un processus ponctuel en deux dimensions, la variance du nombre de points contenus dans un cercle de rayon R croît moins vite que la surface du cercle lorsque R devient arbitrairement grand, c'est-à-dire moins vite que R^2 . Pour les distributions de Poisson et binomiale par exemple, cette variance croît comme le nombre moyen de points à l'intérieur du disque, qui est proportionnel à R^2 : ces distributions ne sont pas hyperuniformes. Pour générer des distributions hyperuniformes, il faut nécessairement introduire un ordre partiel, mais ce n'est pas suffisant : de nombreuses configurations partiellement ordonnées ne sont pas hyperuniformes. Les distributions de Poisson ou binomiale, avec conditions de non recouvrement, en sont des exemples. En outre, les réseaux périodiques sont un cas particulier de distributions hyperuniformes. Le concept d'hyperuniformité a été introduit par un article de 2003 traitant des critères permettant de caractériser et classer les cristaux et des configurations désordonnées spécifiques [16]. Depuis, la communauté scientifique s'est intéressée de manière croissante aux propriétés de ces distributions et s'est aperçue que ce concept jouait un rôle clé dans de nombreux domaines, des mathématiques à la biologie, en passant par la science des matériaux. En mathématiques, la répartition des valeurs propres de certaines matrices aléatoires ou encore la répartition des zéros non triviaux de la fonction zéta de Riemann suivent des distributions hyperuniformes. En biologie, il a été découvert que la répartition des cellules photoréceptrices de certains oiseaux [17], ainsi que celle des récepteurs lymphocytaires responsables du fonctionnement des défenses immunitaires suivaient des lois hyperuniformes [18], tout comme la structure de la cornée chez les humains, ce qui est à l'origine de sa transparence. Dans le domaine des matériaux, il a été anticipé que l'organisation hyperuniforme des constituants de la matière permet d'améliorer les propriétés mécaniques par rapport à une organisation à ordre partiel non hyperuniforme [19]. Désormais, des procédures ont été mises en place pour générer des distributions hyperuniformes de propriétés voulues, notamment la procédure d'optimisation collective des coordonnées [20], ce qui permet de concevoir des systèmes physiques à partir de ces distributions pour obtenir des propriétés nouvelles par rapport aux mêmes types de systèmes sans ordre à longue portée. En particulier, un sous-ensemble de ces distributions hyperuniformes, appelées configurations « hyperuniformes furtives », sont celles pour

lesquelles le facteur de structure est identiquement nul dans un intervalle fini K autour de 0. Ce type de distributions s'est révélé fécond pour réaliser des systèmes ayant des propriétés intéressantes notamment dans le domaine de la manipulation des ondes EM. En effet, il est connu depuis longtemps que les processus de transport des ondes sont liés au facteur de structure [21]. Ces aspects seront développés plus en détail au paragraphe I32.

I3 État de l'art

I31 Absorption dans les métasurfaces Métal Isolant Métal (MIM)

L'absorption du champ EM est un problème d'ingénierie qui se pose depuis plusieurs décennies. Dans le domaine numérique, des milieux absorbants très performants, qu'on appelle les PML (pour « Perfectly Matched Layer »), sont utilisés systématiquement dans les simulations pour modéliser le comportement d'un système isolé de sources extérieures [22]. En revanche, reproduire les propriétés EM de ces matériaux en pratique est bien plus complexe. Dans la suite de ce paragraphe, nous allons voir comment les MS construites selon la structure MIM permettent d'apporter une solution à ce problème, dans différents domaines de fréquences du spectre EM.

I311 Domaines et exemples d'application en micro-ondes

Commençons tout d'abord par le domaine micro-ondes. C'est le domaine spectral qui comprend les fréquences entre 1 et 300 GHz. C'est la gamme de fréquence qui a été historiquement explorée en premier, car la nécessité de construire les MA à des échelles sub-longueur d'onde est moins contraignante à faibles fréquences. En effet, les longueurs d'onde correspondantes s'étendent de 1 mm à 30 cm environ. La fabrication de ces structures via les techniques de micro-fabrication est plus facile qu'à plus petite échelle. En outre, les applications sont nombreuses à ces fréquences, car ce sont les fréquences employées massivement dans les systèmes de télécommunication civils et militaires.

Les premières solutions pour absorber parfaitement une onde incidente ont consisté à exploiter le mécanisme d'interférence destructive après réflexions multiples dans les écrans de Salisbury[23]/Jaumann et Dällenbach [24]. Dans le cas de l'écran de Salisbury, une couche résistive est placée à une distance $\lambda/4n$ d'une couche de métal, séparée par une couche diélectrique homogène. Le paramètre n correspond à l'indice de la couche diélectrique, qui est bien souvent de l'air ($n=1$), λ est la longueur d'onde incidente. Quant à l'écran de Dällenbach, il est constitué d'une couche homogène à pertes d'épaisseur $\lambda/4n$ posée sur un plan de métal. L'épaisseur de $\lambda/4n$ est nécessaire pour garantir la condition de l'interférence destructive. Ce sont des solutions résonantes car elles ne fonctionnent qu'à la longueur d'onde λ . Pour augmenter la bande de longueur d'onde d'absorption, la solution de Jaumann a été d'empiler des écrans de Salisbury pour réaliser l'absorption à différentes fréquences. Une stratégie supplémentaire dérivée de l'écran de Salisbury consiste à remplacer la couche résistive par un ensemble de structurations métalliques ou diélectriques résonantes à la longueur d'onde λ . On appelle ces

structures les circuits analogiques absorbants (circuit analog absorbers en anglais). La structuration induit des effets capacitifs et inductifs, et ainsi la structure peut se modéliser par un circuit RLC équivalent qui présente une adaptation d'impédance avec le vide sur une plus grande plage de fréquence par rapport à l'écran de Salisbury, ce qui explique les performances supérieures en terme de bande de fréquence d'absorption par rapport à l'écran de Salisbury [25]. Néanmoins, le principe physique d'absorption reste le même et donc la distance entre le plan de masse et les motifs reste de l'ordre de $\lambda/4n$. En résumé, dans chacun de ces cas, l'épaisseur du système est donc au minimum de $\lambda/4n$. Comme l'ordre de grandeur de la longueur d'onde dans ce domaine spectral est de l'ordre du cm, cette épaisseur minimale est une contrainte forte vis-à-vis du poids et de l'encombrement des systèmes, c'est pourquoi les chercheurs ont tenté de mettre au point des systèmes absorbants de plus faible épaisseur en employant des mécanismes d'absorption différents : c'est ce que permettent les MS et notamment la configuration MIM, dont nous allons désormais discuter du principe physique. Cette configuration, comme son nom l'indique, consiste à mettre en regard deux motifs métalliques séparées par un isolant.

En 2002, une avancée majeure a été accomplie dans [26] grâce à la conception d'une structure absorbante de faible épaisseur devant la longueur d'onde. La MS consiste cette fois en une configuration MIM où le plan des MA est placé à une distance très faible devant la longueur d'onde au-dessus de la couche métallique. Cette configuration permet de créer une haute impédance à la surface de la structure, présentant un champ électrique tangentiel important, qui peut être dissipé par une simple couche résistive. Ensuite, cette solution a été simplifiée en incluant dans la configuration MIM un diélectrique à pertes [27], ce qui permet de se passer de la nécessité de recourir à une couche résistive supplémentaire pour dissiper le champ EM.

Ces premiers développements autour des MM a permis d'envisager des stratégies pour absorber le champ EM par des structures de faibles épaisseurs grâce notamment à la configuration MIM. Il existe deux régimes différents d'absorption qu'on peut exploiter grâce à la configuration MIM : un régime où l'épaisseur du diélectrique est élevée et l'empilement MIM se comporte comme une cavité de Fabry-Pérot verticale pouvant absorber le champ EM par interférence destructive, comme avec les écrans de Salisbury/Dällenbach et les circuits analogiques absorbants, et un régime de faible épaisseur du diélectrique, où l'absorption se fait grâce au couplage du courant dans les deux interfaces de métal. Nous allons maintenant expliquer comment se produit l'absorption dans ces deux régimes de fonctionnement.

Le comportement d'absorption des MS MIM est très dépendant de l'épaisseur du diélectrique. Les conditions de couplage dépendent fortement de la distance entre les éléments métalliques. Dans [28], les auteurs ont calculé par un modèle théorique les modes de résonances dans la structure MIM représentée en *Figure 5a*), en fonction de l'épaisseur h_d de la couche diélectrique. Les *Figure 5b*) et *c*) montrent l'influence de ce paramètre.

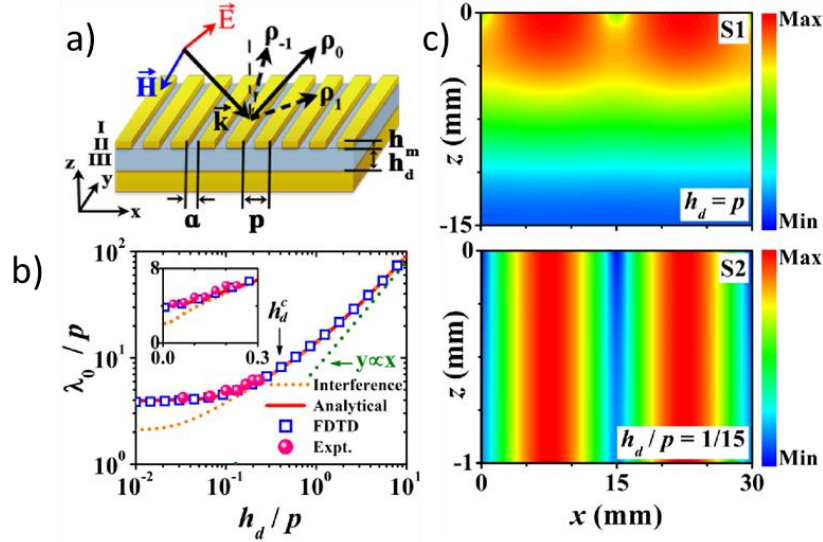


Figure 5 a) Schéma de la structure étudiée b) Longueur d'onde de la résonance fondamentale en fonction de l'épaisseur h_d de la couche diélectrique, normalisées par la période du réseau et c) Répartition spatiale de la composante H_y du champ magnétique pour deux valeurs de h_d . Reproduit de [28].

La Figure 5a) montre la structure étudiée dans le domaine 2-6 GHz, modélisée théoriquement en tenant compte des couplages possibles entre les courants des deux interfaces métalliques. En Figure 5b), la longueur d'onde de résonance du mode fondamental de la structure est représentée en fonction de l'épaisseur du diélectrique. On remarque que le modèle de l'interférence (représenté par la ligne pointillée orange) développé dans [29], qui modélise l'empilement MIM comme deux interfaces découplées subissant des réflexions multiples interférant entre elles, modélise correctement la fréquence de résonance pour des épaisseurs de diélectrique $h_d/p > 10^{-1}$ environ. En réalité, il ne s'agit même plus dans ce cas d'une unique MS, mais de deux MS différentes séparées par un diélectrique. En revanche, pour des épaisseurs plus faibles, il est nécessaire de prendre en compte les couplages pour estimer le comportement d'absorption car le modèle reposant sur l'interférence ne rend plus compte de la fréquence des modes de résonance de la structure de manière adéquate. Enfin, la Figure 5c) montre comment évolue la répartition de la composante H_y du champ magnétique (le système de coordonnées est montré sur la Figure 5a)) dans les deux régimes de fonctionnement. On voit que la répartition est très différente suivant l'épaisseur du diélectrique : pour une épaisseur égale à la période, la répartition du champ est celle d'une résonance verticale de Fabry-Pérot, tandis que pour une épaisseur très inférieure à la période, le profil est au contraire celui d'une onde stationnaire horizontale (on remarque les nœuds et les ventres dans la direction x).

Dans ce dernier cas, les modes résonants de la structure viennent d'une condition d'interférence constructive du champ EM réfléchi dans la cavité de Fabry-Pérot horizontale formée par les MA, qui s'exprime par l'expression [30] :

$$d \frac{2\pi}{\lambda} n_{eff} = m\pi - \phi \quad (9)$$

Dans cette relation, d représente la dimension latérale du MA, λ la longueur d'onde incidente, n_{eff} l'indice effectif du mode, m le numéro du mode et ϕ le saut de phase acquis par réflexion du champ EM

sur les bords du MA. Les conditions de résonance correspondent aux conditions d'interférence constructives du champ EM réfléchi sur les bords du MA. Dans le régime de couplage, le champ EM incident induit un courant à la surface des couches métalliques. La faible épaisseur du diélectrique entraîne le couplage évanescent du champ EM produit par les deux courants électriques, qui forment alors une boucle de courant de part et d'autre de la couche isolante. Cela crée un fort champ magnétique dans la couche isolante. La puissance EM peut alors être dissipée par les pertes dans les matériaux. Ce mécanisme d'absorption est radicalement différent de la suppression du champ réfléchi par interférence. Une étape importante a été franchie en 2008 lorsque la première MS MIM absorbante a été fabriquée dans le domaine micro-ondes [31]. Le principe de sa conception a été par la suite massivement réemployé car il est facilement transposable à d'autres domaines fréquentiels. La *Figure 6a)* montre une cellule élémentaire de la MS utilisée.

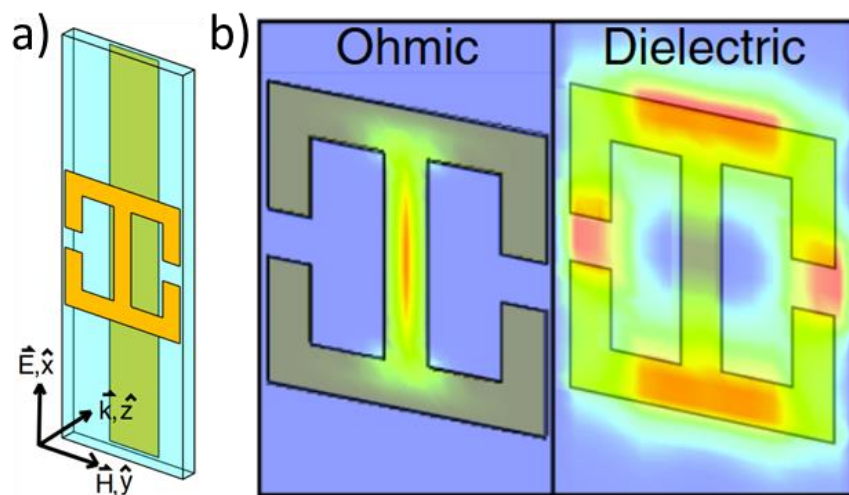


Figure 6 a) Cellule élémentaire et b) Répartition des pertes dans les matériaux. Reproduit de [31]

La cellule élémentaire est composée de deux MA : un anneau électrique et un ruban métallique aligné avec l'anneau. En *Figure 6b)*, les pertes dans les matériaux sont représentées à la fréquence de résonance. Il apparaît que la dissipation du champ EM se produit majoritairement dans la couche diélectrique. Ceci est logique dans la mesure où les métaux sont des conducteurs quasi parfaits à ces fréquences. Grâce à cette structure, les auteurs ont pu réaliser expérimentalement un niveau d'absorption de 88% à la fréquence de $f=11,5$ GHz, pour une épaisseur totale de $\lambda/35$. La diminution de l'épaisseur est la conséquence de la modification du mécanisme d'absorption par rapport aux solutions des écrans de Salisbury/Dällenbach et des structures qui exploitent l'interférence. Dans ce cas, c'est le couplage entre les courants des deux couches métalliques qui permet de piéger pour dissiper la puissance EM dans le diélectrique.

Dans cette réalisation, la transmission par la structure est non négligeable ce qui peut expliquer l'absorption non unitaire de 88%. Il a été montré dans cette étude que l'empilement de plusieurs couches MIM de ces MA permettait de diminuer le coefficient de transmission de la structure, mais cette stratégie

est une concession importante vis-à-vis de la volonté de réduire l'épaisseur des absorbants. Par la suite, cette étude a stimulé de nombreuses autres réalisations d'absorbants MIM. La principale amélioration de ces développements ultérieurs a consisté à simplifier la structure en employant une couche inférieure homogène appelée le plan de masse à la place du ruban métallique. Le principe d'absorption reste le même dans la mesure où dans cette nouvelle configuration, le MA de la couche supérieure est couplé avec son image par le miroir quasi parfait formé par le plan de masse. Par ailleurs, cette configuration présente d'autres avantages : d'une part, le plan de masse bloque l'intégralité du champ et le coefficient de transmission de la structure est systématiquement nul. Cela permet de simplifier la conception et notamment d'éviter d'avoir recours à l'empilement des couches MIM proposé dans [31]. D'autre part, la fabrication est plus facile car seule une couche est structurée.

Dans ce nouveau paradigme, l'absorption parfaite est obtenue à condition d'annuler la réflexion par la MS : c'est une condition d'adaptation d'impédance, qui s'exprime :

$$Z = \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon}} = Z_0 \quad (10)$$

Dans cette équation, Z représente l'impédance de la MS, et $Z_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} = 377 \Omega$ est l'impédance du vide.

Dans l'étude [31], cette condition a été obtenue en modélisant directement la cellule élémentaire de la *Figure 6a*) par sa permittivité électrique ϵ et sa perméabilité magnétique μ , obtenues par simulation numérique. La permittivité ϵ dépend de la géométrie de l'anneau tandis que celle de la perméabilité μ dépend de la distance entre les couches métalliques c'est-à-dire de l'épaisseur de la couche diélectrique, et de la géométrie du ruban métallique inférieur. Ainsi, on peut modifier indépendamment ces deux grandeurs pour satisfaire au critère d'adaptation d'impédance et trouver les paramètres géométriques adéquats pour obtenir l'absorption unitaire par optimisation numérique.

Cependant, la description des MS par leurs permittivité et perméabilité présente des limites (voir paragraphe I21). Ainsi, des outils plus adéquats ont été développés pour exprimer le critère d'adaptation d'impédance. Par exemple, l'étude [32] a proposé de modéliser le fonctionnement des MS MIM par deux grandeurs, les coefficients de qualité radiatif et d'absorption de la MS, notés respectivement Q_r et Q_a . Le critère d'absorption parfaite est réalisé lorsque $Q_r=Q_a$, correspondant au régime où l'énergie dissipée par la structure est égale à l'énergie du couplage radiatif entre la MS et l'espace libre. On appelle cette situation d'équilibre le couplage critique. Les *Figure 7a*) et *b*) montrent respectivement l'absorption et la variation de phase du coefficient de réflexion par une structure MIM en fonction des coefficients de qualité.

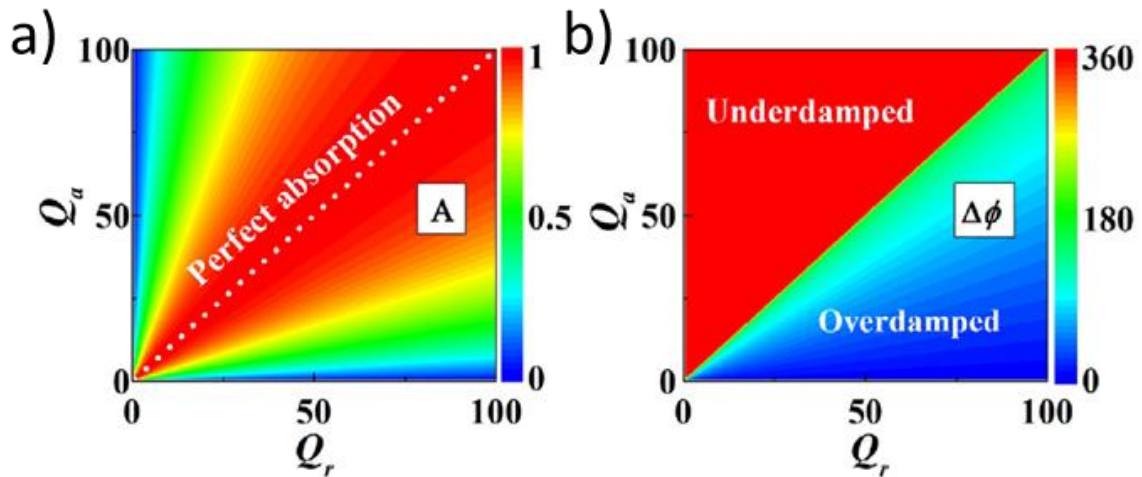


Figure 7 a) Absorption et b) phase du champ réfléchi par une MS MIM en fonction des coefficients de qualité. Reproduit de [32]

On voit que la condition de couplage critique sépare le domaine de comportement des MS en deux parties distinctes appelées respectivement sous-amortie ($Q_a > Q_r$) et sur-amortie ($Q_r > Q_a$), correspondant à deux régimes de phase réfléchie différentes, associés à des coefficients d'absorption inférieurs à 1. Le régime sous-amorti est caractérisé par un coefficient de réflexion variant de 360° lorsque la fréquence du champ EM varie de part et d'autre de la résonance des MA, alors que cette variation est plus faible dans le cas sur-amorti. Cela permet d'expliquer pourquoi les MS en configuration MIM peuvent être employées dans des applications très différentes : aussi bien pour l'absorption parfaite, que comme surface réfléchissante comme par exemple dans [33], où une MS MIM sert de surface réfléchissante à variation locale de phase pour diriger le champ incident dans des directions dites anormales. En outre les auteurs de [32] ont montré que les coefficients de qualité Q_a et Q_r possédaient une dépendance opposée vis-à-vis de l'épaisseur h de la couche isolante : Q_a est croissante avec h tandis que Q_r est au contraire inversement proportionnelle à h . Dans l'étude, les auteurs ont ainsi montré comment le contrôle du paramètre h permettait de passer du régime sous-amorti au régime sur-amorti. Plus généralement, l'étude [32] montre comment relier les coefficients de qualité aux paramètres géométriques de la MS. Ainsi, il est possible de concevoir les MS de façon à réaliser une absorption parfaite (donc une adaptation d'impédance avec le milieu incident) à partir de l'expression de ces quantités. En calculant l'impédance équivalente et les coefficients de qualité radiatif et d'absorption présentés par un réseau de résonateurs diélectriques cubiques de BaSrTiO_3 (BST) posé sur un plan de masse au moyen d'un circuit équivalent, il a été montré dans [34] comment les conditions de couplage critique et d'adaptation d'impédance pouvaient être reliées entre elles. Cette approche permet d'enrichir les outils de modélisation accessibles pour guider la conception des absorbants parfaits : bien que développée à partir d'un système de résonateurs diélectriques, elle est valable pour toute structure résonante et a été également appliquée dans cet article à la conception d'un absorbant MIM multi-bandes.

Dans le domaine micro-ondes, les applications des absorbants EM sont nombreuses. Initialement plutôt réservé au domaine militaire, l'intérêt des absorbants s'est par la suite étendu au domaine civil avec le

développement des technologies de communications. Dans le domaine militaire, les absorbants trouvent leur application naturelle dans les dispositifs de furtivité radar des équipements. Ceux-ci fonctionnent en général dans la gamme micro-ondes car les ondes de plus haute fréquence sont trop fortement atténuées par leur propagation dans l'atmosphère étant donnée les distances à parcourir [35]. Dans le domaine civil, les absorbants permettent de protéger les équipements et personnes d'une exposition indésirable au champ EM [36], [37]. Ces applications recouvrent le domaine de la Compatibilité Electromagnétique (CEM). Enfin, les absorbants trouvent également leur place dans la conception de bolomètres [38], et d'autres détecteurs [39].

Pour certaines applications, il peut être important d'augmenter la largeur spectrale d'absorption. Cependant, les MS MIM sont par essence des dispositifs résonants, fonctionnant donc sur des domaines spectraux étroits [31]. Des stratégies ont été explorées pour augmenter cette largeur spectrale d'absorption. Une approche simple en apparence consiste à fabriquer des MA de dimension variable. La résonance associée à chaque MA produit un pic de résonance autour d'une fréquence particulière en vertu de la relation (9) (le paramètre d varie d'un MA à l'autre). Si les résonances sont spectralement proches, le spectre d'absorption produira un spectre continu d'absorption. Dans [40], cinq couples de MA de taille différente, similaires à celui utilisé dans [31], ont été employés dans une même cellule élémentaire pour augmenter la largeur de bande d'absorption. Les *Figure 8a*) et *b*) montrent le couple de MA et les dimensions associées des cinq couples différents de MA. La *Figure 8c*) montre enfin le spectre associé à chaque MS construite avec chacun des cinq couples de MA. On voit que les pics de fréquence de résonance sont relativement proches, ce qui permet de créer une bande d'absorption relativement continue. En revanche, un inconvénient important de cette solution est que le nombre de MA que l'on peut inclure dans une cellule élémentaire sub-longueur d'onde est limité par la taille de cette cellule. Ainsi, l'augmentation de la largeur de bande est elle aussi limitée. Pour pallier ce problème, des travaux ont consisté à intégrer les MA verticalement dans la structure [41]. Cependant, l'inconvénient majeur est l'augmentation de l'épaisseur de la MS. Enfin, la géométrie de certains MA permet de les imbriquer dans une même cellule élémentaire pour favoriser l'intégration horizontale [42].

Une autre stratégie consiste à employer les résonances d'ordre supérieur pour multiplier les bandes d'absorption, correspondant aux indices m successifs dans la relation (9) [43]. Cependant, ces modes sont en général disjoints spectralement ce qui rend complexe la tâche de créer une bande continue d'absorption via ce mécanisme. D'autres approches consistent à travailler sur la géométrie du MA pour favoriser une réponse multi-modes [44]. Enfin, il est possible, compte tenu des dimensions plus importantes des cellules élémentaires à ces fréquences du spectre, d'intégrer des éléments capacitifs et résistifs dans la MS. L'intérêt est de dissiper plus efficacement le champ EM concentré dans certaines zones spécifiques du MA, sans compter uniquement sur les pertes des matériaux constitutifs. Dans [45], l'emploi d'éléments discrets résistifs et capacitifs a permis d'obtenir une bande continue de 700 MHz de niveau d'absorption supérieur à 0,9 à la fréquence centrale de 2,7 GHz environ, ce qui constitue une largeur spectrale relative de 26%.

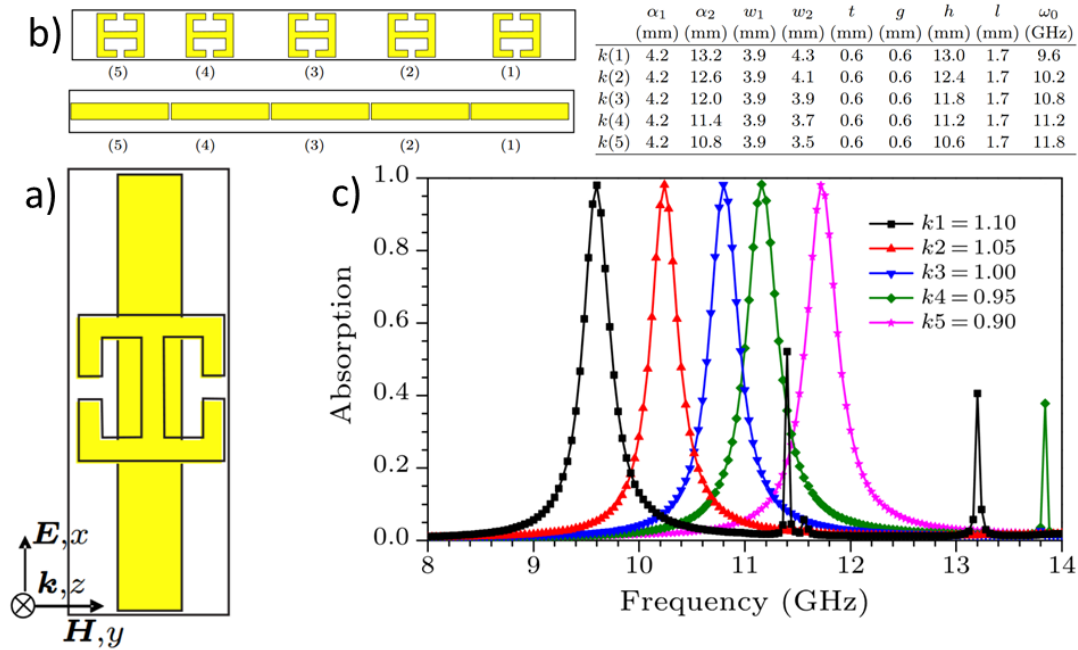


Figure 8 a) Couple de MA utilisé b) Cinq couples de MA de dimensions différentes et leur dimensions respectives et c) Spectre d'absorption des MS composées respectivement des cinq couples de MA. Reproduit de [40]

Dans [46], les auteurs ont fabriqué une MS absorbante composée de MA MIM et d'éléments résistifs et capacitifs, et ont montré quel rôle jouaient ces deux types d'éléments. La Figure 9a) montre le motif d'une cellule élémentaire de la MS, dont les dimensions des interstices de $g=2$ mm permettent l'insertion d'éléments résistifs et capacitifs.

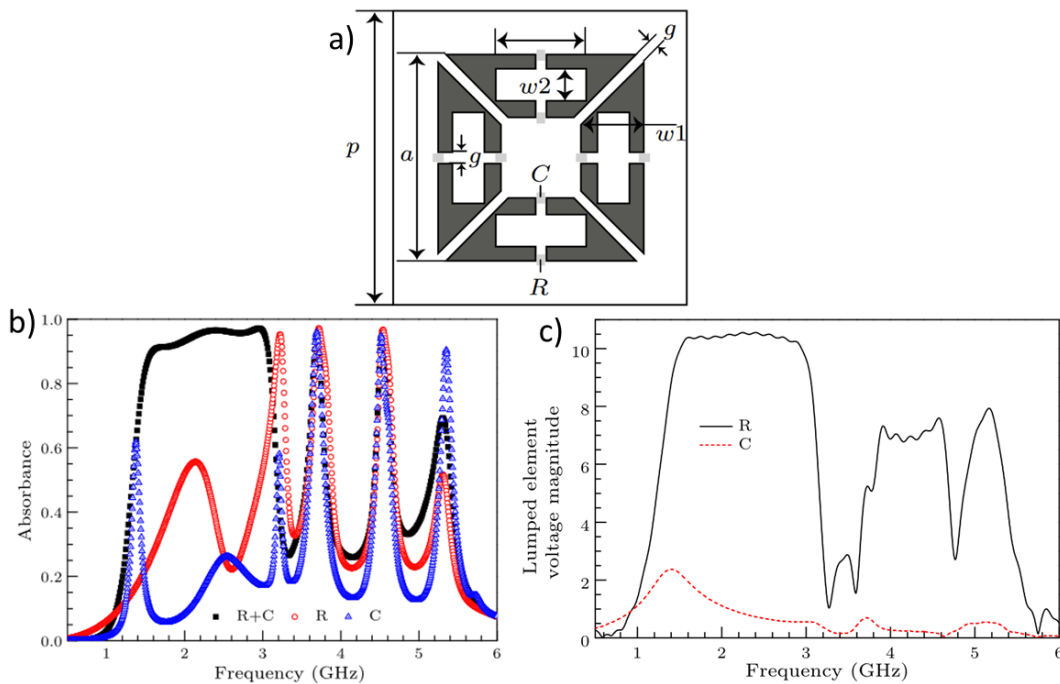


Figure 9 a) Schéma du b) Absorption spectrale de la MS pour différentes conditions de charges et c) Tension simulée dans les charges capacitives et résistives. Reproduit de [46]

La Figure 9b) montre l'absorption spectrale lorsque seuls les éléments capacitifs ou résistifs sont présents, ou lorsque les deux sont associés dans la cellule élémentaire de la MS. On voit que seule

l'association des deux éléments permet d'obtenir un fort niveau d'absorption excédant 90% dans le domaine spectral 1,57-3,07 GHz (soit une bande d'absorption relative de près de 65%). Les auteurs ont de plus simulé la tension électrique dans les éléments capacitifs et résistifs (voir *Figure 9c*), et ont ainsi montré que la dissipation de la puissance s'effectuait principalement dans les résistances. Ainsi, il apparaît que même si les capacités ne participent pas directement à la dissipation de l'énergie EM, leur rôle est essentiel pour améliorer l'absorption, car leur présence augmente l'efficacité d'absorption dans les résistances.

1312 Domaines et exemples d'application en optique

Un avantage de la structure MIM est qu'elle peut être aussi bien employée en micro-ondes qu'aux fréquences optiques. Lorsqu'on parle de résonance magnétique en micro-ondes, on parle de couplage de plasmons en optique. Dans une configuration MIM structurée par des MA, le champ incident peut exciter le plasmon de surface localisé (PSL) du MA, ainsi que le plasmon de surface propagatif (PSP) à l'interface entre le diélectrique et le plan de masse. Nous avons vu que le champ EM associé à une excitation plasmonique dans une configuration MIM couplée était très localisé aux deux interfaces métal/isolant. Cependant, si l'épaisseur de la couche isolante est suffisamment faible, les deux plasmons peuvent se coupler par le champ évanescent. Ainsi, une boucle de courant se forme et un champ magnétique est créé dans la couche diélectrique. On voit que ce comportement physique est très similaire à ce qu'on observe aux fréquences micro-ondes. Ainsi, pour concevoir les MS, l'idée générale est bien souvent d'employer les mêmes structures qu'aux fréquences micro-ondes, en diminuant la taille de la structure pour que la condition (10) soit respectée à une fréquence du domaine optique. Il faut toutefois prendre en compte que le comportement des matériaux n'est pas nécessairement transposable en fréquence. C'est principalement le cas des métaux qui peuvent être pénétrés par l'onde EM, contrairement aux fréquences micro-ondes. La *Figure 10* montre l'évolution spectrale de la permittivité de l'or de 150 à 3000 THz selon le modèle de Palik [47].

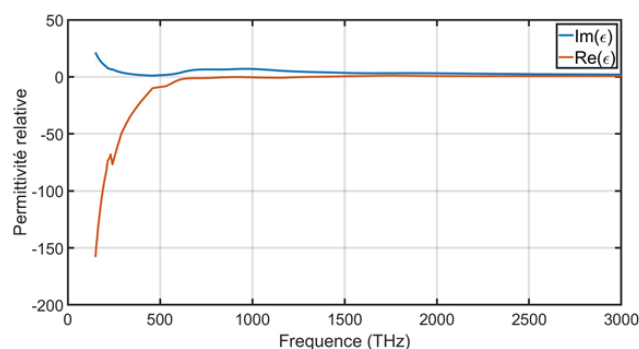


Figure 10 Permittivité relative de l'or selon le modèle de Palik dans le domaine fréquentiel [150 ; 3000] THz

Nous voyons que l'or est très dispersif aux fréquences optiques. En particulier, la partie réelle de la permittivité diminue très brutalement dans la gamme infrarouge. Cependant, la plus faible pénétration du champ EM dans le métal aux fréquences optiques augmente en réalité la résistance du métal et donc

les pertes ohmiques. Aux fréquences optiques, l'épaisseur de peau dans l'or vaut seulement 30 nm environ [48]. Au voisinage de la fréquence plasma de l'or, on peut considérer les métaux comme des matériaux diélectriques à pertes. Ainsi les pertes ohmiques peuvent être mises à profit pour dissiper le champ EM créé dans la structure. Contrairement au domaine micro-onde, ce sont les pertes dans les métaux qui dominent l'absorption dans les MS MIM absorbantes aux fréquences optiques [49]. Cette similarité de comportement de la structure MIM en fonction de la fréquence a été montrée dans [50], où une MS MIM dont la couche supérieure est formée par de fines fentes percées dans une couche homogène est étudiée (voir *Figure 11a*). Dans ce système, les auteurs ont considéré le mode de résonance de Fabry-Pérot vertical piégeant les ondes EM dans la couche diélectrique intermédiaire. Ils ont calculé l'amplitude du champ magnétique dans le diélectrique et exprimé ce champ en fonction des amplitudes des champs incident et réfléchi par la matrice de transfert T. A condition que l'indice équivalent calculé à partir de la matrice de transfert soit indépendant de la fréquence et proche de 0, une absorption parfaite et surtout indépendante de la fréquence du champ EM incident est démontrée. Seuls les paramètres géométriques interviennent dans la fréquence de résonance, ce qui permet d'accorder la longueur d'onde de résonance dans un très large spectre allant du domaine micro-ondes au visible (voir *Figure 11b*). La seule contrainte est de pouvoir modéliser les métaux ou semi-conducteurs dopés par un modèle de Drude, ce qui limite les longueurs d'onde admissibles aux longueurs d'onde supérieures à la longueur d'onde plasma des métaux et semi-conducteurs dopés. En effet, au-delà de cette fréquence, le modèle de Drude n'est plus valide à cause des phénomènes d'absorption inter-bandes qui ne sont pas modélisés par cette approche.

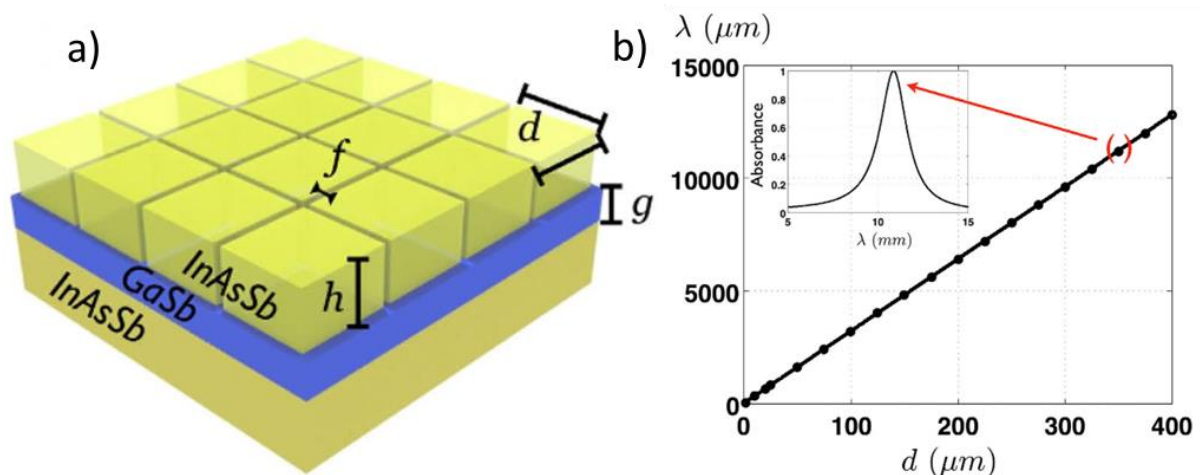


Figure 11 a) Configuration et paramètres géométriques de la MS étudiée b) Fréquence de résonance en fonction de la période d des fentes. Reproduit de [50]

La similarité du comportement physique permet de transposer les observations faites en micro-ondes : aux fréquences optiques, il existe également deux régimes bien différents en fonction de l'intensité du couplage entre les deux plasmons. L'épaisseur de diélectrique est donc encore une fois un paramètre déterminant. Dans [51], les auteurs ont exploré le spectre d'absorption dans le proche infrarouge/visible d'une MS MIM avec une épaisseur t_{ALD} de diélectrique de très faible épaisseur ($3 < t_{\text{ALD}} < 8 \text{ nm}$) formée

par le procédé ALD (Atomic Layer Deposition). Contrairement à l'étude [28] (voir *Figure 5b*), où une saturation de la fréquence de résonance du mode fondamental a été observée, dans ce domaine de fréquence (100-550 THz) la diminution de l'épaisseur diminue la fréquence de résonance du mode fondamental (mode magnétique) de 135 à 180 THz, avec les autres paramètres de la géométrie quasi-identiques. Cela est le résultat d'une augmentation de l'indice effectif du mode fondamental (voir relation (9)), qui est un moyen selon les auteurs de diminuer la dimension latérale des MA pour une résonance à fréquence donnée, ce qui rend la MS encore plus sub-longueur d'onde.

De même, des MS opérant dans les deux types de régime peuvent être employées pour absorber le champ EM en configuration MIM, en régime d'interférence [52], ou de couplage [49]. Dans le cas de la géométrie plane de l'empilement MIM, la couche métallique supérieure doit avoir une épaisseur plus faible que l'épaisseur de peau de manière à autoriser la transmission dans la couche isolante. Dans [52], cette épaisseur est fixée à 30 nm au sein d'un empilement Ag/SiO₂/Ag.

Les applications des MS absorbantes sont également importantes dans le domaine optique du spectre. Tout d'abord, les MS absorbantes sont très utilisées dans le domaine optique pour les applications de bolométrie [53]. De plus, outre les applications communes avec le domaine micro-ondes, comme la détection [54], l'absorption dans les MS peut bénéficier à d'autres domaines, notamment la collecte de l'énergie solaire. En effet, le spectre du Soleil s'étend en grande partie dans le domaine visible. Dans les applications photovoltaïques, le champ EM incident est converti en courant électrique (on parle de photocourant) dans une couche de semi-conducteur. Le champ EM crée ainsi des paires électrons-trous dans le semi-conducteur. Le courant peut donc être transporté puis stocké ou utilisé. Afin de convertir l'énergie du champ EM en courant dans le semi-conducteur, une géométrie MIM spécifique peut être employée, dans laquelle la couche isolante est remplacée par un semi-conducteur : on appelle cette géométrie « MSM » pour Métal-Semiconducteur-Métal. Cette géométrie est intéressante car elle permet comme on l'a vu de travailler avec de faibles épaisseurs de semi-conducteurs. Cette propriété permet d'augmenter l'efficacité des cellules solaires par réduction des recombinaisons des paires électrons-trous, lorsque l'épaisseur du semi-conducteur est plus faible que la longueur caractéristique de recombinaison [55]. Dans [56], une MS en configuration MSM a été employée dans la bande de longueur d'onde 400-700 nm. Si l'absorption est quasi-unitaire dans la bande 400-600 nm, une plus faible partie (70% au maximum) est absorbée dans la couche diélectrique. Le reste de l'énergie présente dans le métal est perdue. Il est montré que la structure MSM permet d'augmenter l'absorption dans le semi-conducteur comparé à une simple structure semi-conducteur/plan de masse. Une autre manière d'exploiter l'énergie solaire repose sur le principe de la thermophotovoltaïque. Cette technique permet justement d'exploiter l'énergie dissipée par résistance ohmique dans les métaux. Dans ce paradigme, une cellule solaire convertit le rayonnement infrarouge lié à l'élévation de température dans la structure en courant électrique. Ainsi, cette technique est adaptée aux structures MIM aux fréquences optiques car la dissipation ohmique dans les métaux s'accompagne de fortes augmentations de température et permet ainsi une émissivité infrarouge intense. Ce principe a été exploité notamment dans [57].

De nombreux autres travaux ont été entrepris pour augmenter la largeur de bande d'absorption dans le domaine visible. En vertu du principe qui consiste à transposer les structures MIM du domaine micro-ondes en réduisant les dimensions, les stratégies pour augmenter la largeur de bande sont très similaires à celles qu'on peut employer en micro-ondes, notamment l'emploi de résonateurs de dimensions multiples [58], ou de forme spécifique [59]. Une stratégie supplémentaire aux fréquences optiques consiste à tirer profit des pertes importantes dans les métaux de transition (comme le titane, le tungstène ou le nickel par exemple, appelés aussi matériaux réfractaires), pour fabriquer des MS en configuration MIM. Dans [60], une MS périodique composée de disques en titane séparés d'un plan de masse d'or par une couche de SiO_2 a permis de réaliser une absorption supérieure à 0,9 sur un domaine de 925 nm (bande 900-1825 nm), ce qui constitue une bande continue d'absorption de largeur 70% environ. La *Figure 12* montre la cellule élémentaire de la MS étudiée, et le spectre d'absorption correspondant.

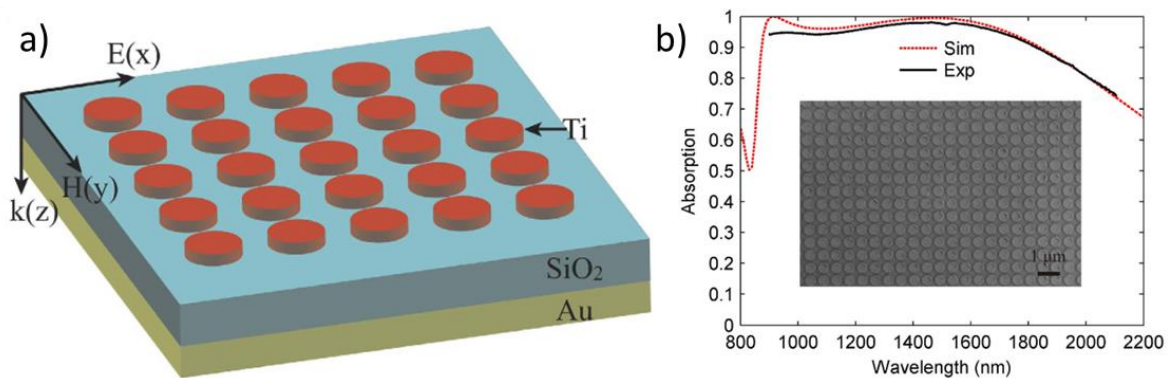


Figure 12 a) Géométrie de la cellule élémentaire employée et b) Spectre d'absorption de la MS fabriquée. Reproduit de [60]

Cette largeur de bande est attribuée au faible facteur de qualité de la résonance plasmonique dans le titane, liée aux pertes ohmiques importantes dans ce domaine du spectre. Lorsque la même structure est réalisée avec de l'or, une absorption bande étroite est réalisée. L'intérêt supplémentaire d'utiliser les métaux réfractaires est leur haut point de fusion, ce qui les rend intéressants pour les applications thermophotovoltaïques par exemple.

I32 Métasurfaces MIM désordonnées

Une stratégie possible pour augmenter la largeur de bande d'absorption est l'introduction du désordre dans la conception de la MS. Nous allons voir maintenant comment le désordre permet d'agir sur les propriétés des MS, puis nous présenterons quelques travaux qui ont tiré profit du désordre pour améliorer le comportement des MS, notamment leur absorption.

I321 Effets du désordre de position sur le comportement des MS

Les propriétés de rayonnement du champ EM par une MS dépendent de l'introduction du désordre à deux titres. D'abord, le désordre modifie les conditions d'interférence entre les différentes contributions du champ rayonné par chacun des MA de la MS. En configuration périodique, les conditions

particulières de l'interférence conduisent au rayonnement du champ EM par les MS dans des directions discrètes de l'espace, phénomène qu'on appelle diffraction. On peut ainsi numéroter les directions de l'espace dans lesquelles le champ sera rayonné, c'est ce qu'on appelle l'ordre de diffraction. Dans cette configuration particulière, l'interférence est constructive dans les directions des ordres de diffraction, et destructive dans les autres. Ce phénomène est utile pour manipuler le champ EM, et est à la base de nombreux dispositifs EM, notamment les cristaux photoniques. Cependant, introduire du désordre permet d'ajouter un degré de liberté supplémentaire à la manipulation du champ EM. D'autre part, dans certains cas, le milieu à étudier est imposé et peut être fortement désordonné, comme dans le cas de l'imagerie en milieu biologique. Pour ces deux raisons, il est donc important de maîtriser les effets du désordre sur ces mécanismes de rayonnement. Nous allons présenter comment cet aspect a été contrôlé dans des milieux diffusants.

Le contrôle de la propagation du champ EM à travers les milieux désordonnés est un problème complexe. Lorsque l'on illumine par une onde plane un milieu composé de nombreux éléments diffusants, si l'on représente le champ EM obtenu dans le milieu après une distance de propagation suffisante, la figure obtenue sera composée de zones de forte amplitude de champ et de zones de plus faible amplitude réparties aléatoirement. La figure correspondante s'appelle « figure de speckle ». La *Figure 13a*) représente une figure de speckle typique obtenue dans un milieu désordonné [61]. Dans cette figure de speckle, les zones de forte amplitude du champ EM sont associées à des conditions d'interférence constructive du champ diffusé par les éléments du milieu. Cependant, la position de ces zones est aléatoire. Une avancée importante concernant la compréhension de la propagation du champ EM dans des milieux désordonnés a été réalisée en 2010, lorsqu'une étude a montré qu'en utilisant une procédure d'optimisation, on pouvait tirer profit du désordre pour focaliser le champ EM dans le milieu [62]. Cette technique repose sur la connaissance du comportement de transmission par le milieu pour un ensemble d'ondes planes de référence. En optimisant le front d'onde d'un faisceau incident, on peut obtenir une focalisation de ce faisceau. Cette technique est maîtrisée à l'heure actuelle et est notamment exploitée au niveau industriel par l'entreprise GreenerWave qui propose des solutions pour faire communiquer des appareils électroniques dans des environnements domestiques par exemple, qui sont des milieux fortement désordonnés. Initialement, la modulation du front d'onde était réalisée à l'aide de modulateurs spatiaux de lumière et de matrices de micro miroirs. Désormais, l'intérêt se porte sur les MM reconfigurables pour réaliser l'ingénierie du front d'onde. Les comportements d'interférence du champ EM dans un milieu diffusant peuvent être également étudiés par le procédé inverse qui consiste à réaliser l'ingénierie du désordre lui-même et non de l'excitation. Dans ce cas, l'outil qui permet de modéliser les propriétés d'interférence du champ rayonné par un ensemble de MA est le facteur de structure (voir paragraphe I23). Dans les études [63] et [64], la propagation du champ EM à travers un milieu fortement diffusant est ainsi optimisée par le recours à une distribution hyperuniforme furtive. Ce type de distributions hyperuniformes sont caractérisées par un facteur de structure qui s'annule dans un domaine borné K de vecteurs d'onde (voir paragraphe I232). Dans ces deux travaux, l'utilisation de

milieux hyperuniformes furtifs a permis d'augmenter respectivement la transmission et l'absorption. En effet, on peut montrer que dans un régime de diffusion simple (l'onde réfléchi par le milieu a interagi avec un seul élément diffusant), l'intensité $I_{diff}(\mathbf{k}_d)$ diffusée dans la direction \mathbf{k}_d par un milieu complexe est proportionnelle au facteur de structure :

$$I_{diff}(\mathbf{k}_d) \sim S(\mathbf{k}_d - \mathbf{k}_i) \quad (11)$$

Dans cette équation, \mathbf{k}_i désigne le vecteur d'onde de l'onde incidente. Ainsi, si le vecteur d'onde $\mathbf{k}_d - \mathbf{k}_i$ appartient au domaine K où le facteur de structure s'annule, la diffusion est supprimée. Cette propriété a été exploitée dans [63], où un milieu diffusant est rendu transparent par un simple déplacement des positions des éléments diffusants d'une configuration complètement aléatoire à une configuration hyperuniforme furtive. La diffusion est supprimée et le milieu est sans pertes, ce qui rend le milieu transparent. La *Figure 13b*) montre le diagramme angulaire de l'intensité moyenne du champ diffusé, pour un désordre hyperuniforme furtif (bleu), comparé à un désordre aléatoire (rouge), pour deux vecteurs d'onde incidents différents. L'intensité en fonction l'angle θ d'observation est moyennée sur plusieurs distributions. A gauche, le vecteur d'onde appartient au domaine où le facteur de structure est nul, et à droite, il n'appartient pas au domaine K . On voit que l'intensité diffusée augmente beaucoup dans un domaine $|\theta| > 134^\circ$ lorsque le vecteur d'onde n'est pas inclus dans le domaine où $S(\mathbf{k})$ s'annule dans le cas de la distribution hyperuniforme furtive. Au contraire, elle est presque nulle lorsque le vecteur d'onde est inclus dans le domaine K , comme on peut le voir sur la figure de gauche de la *Figure 13b*), où l'on distingue à peine l'intensité diffusée représentée en bleu.

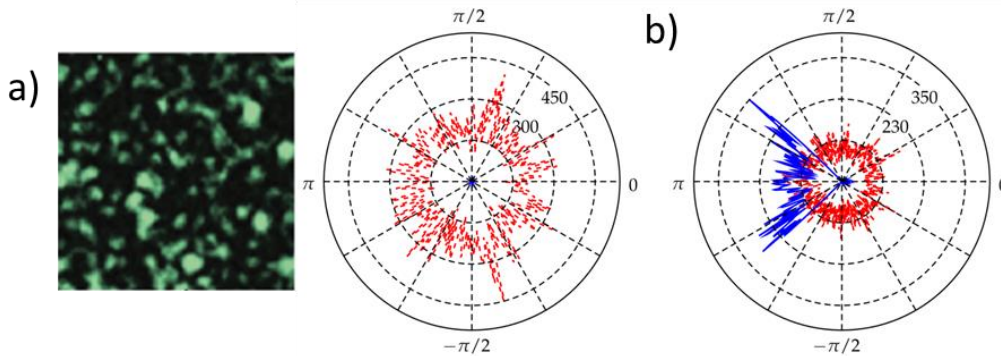


Figure 13 a) Figure de speckle d'un milieu désordonné. Reproduit de [61] et b) diagramme angulaire de l'intensité moyenne du champ diffusé, pour un désordre hyperuniforme furtif (bleu), comparé à un désordre aléatoire (rouge), pour deux vecteurs d'onde incidents différents. Reproduit de [63]

En outre, cette étude montre que la propriété reste vraie même dans un régime de diffusion multiple. De même, on peut exploiter cette propriété dans un système où les diffuseurs sont aussi absorbants. En configuration hyperuniforme furtive, on observe une augmentation de l'absorption par les diffuseurs par rapport à une distribution complètement aléatoire [64]. Dans cette thèse, nous allons adopter une approche d'ingénierie du désordre pour optimiser le comportement d'absorption de nos MS.

Nous avons vu que l'introduction du désordre changeait fortement les propriétés de rayonnement du champ EM par un ensemble d'objets diffusants grâce à la modification des conditions d'interférence du

champ rayonné par chacun des objets de la distribution. Ces observations, qu'on peut faire dans les milieux non résonants cités plus haut, s'appliquent aussi aux MS car dans ces structures, les MA sont aussi des éléments qui rayonnent du champ notamment lorsqu'ils sont excités à leur fréquence de résonance. Cependant, le caractère résonant de ces MA les différencie des éléments diffusants évoqués dans le paragraphe précédent. Il y a dans ces systèmes un effet supplémentaire à considérer : la modification du comportement individuel de résonance des MA avec l'introduction du désordre. En effet, lorsqu'un ensemble de MA résonants est excité par un champ EM incident, ces MA captent le champ EM. Ce champ est ensuite converti soit de manière non radiative en pertes dans le matériau, soit rayonné. Ce champ rayonné peut agir comme une source secondaire et ainsi modifier la condition de résonance des autres résonateurs de la distribution. On appelle ce phénomène d'interaction le couplage entre MA. En fonction de la distance d'interaction des MA, deux régimes peuvent être distingués : un régime où les MA interagissent avec les composantes propagatives du champ rayonné, régime qu'on appelle couplage en champ lointain, et un régime où les composantes évanescentes du champ rayonné interviennent : c'est le couplage en champ proche. L'importance des couplages sur les propriétés d'absorption a été montrée dans les distributions périodiques dans [34]. Dans cette étude, une MS composée de MA de BST a été étudiée, et la valeur de la période permettant d'obtenir la condition de couplage critique a été évaluée. Il a été montré que la valeur du coefficient de qualité d'absorption était indépendante de la valeur de la période mais dépendait seulement du matériau utilisé. En revanche, le coefficient de qualité radiatif est fortement influencé par le choix de la période. Ainsi, il existe en général une unique période qui permet de garantir la condition d'égalité correspondant à l'absorption unitaire. La *Figure 14* montre l'évolution du coefficient de qualité radiatif et le niveau d'absorption dans la MS étudiée en fonction du paramètre de la période.

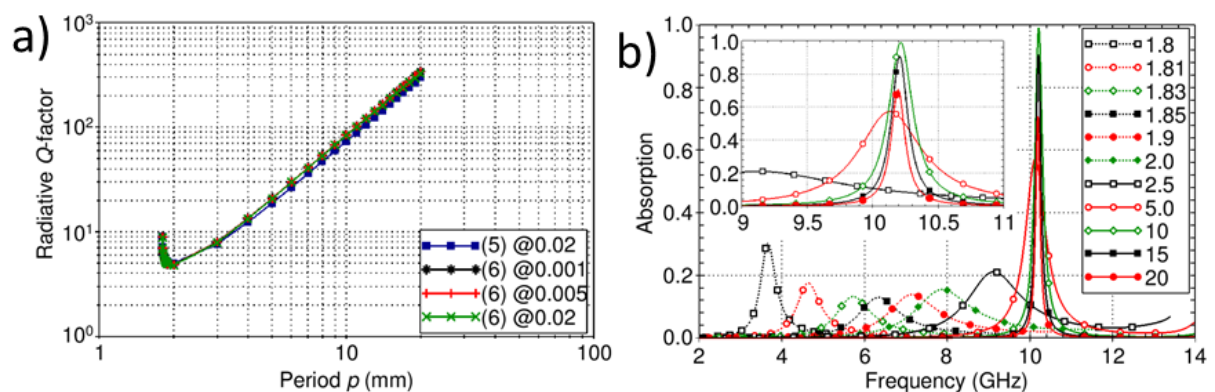


Figure 14 a) Coefficient de qualité radiatif en fonction de la période pour différents niveaux de pertes dans le BST et b) Niveau d'absorption en fonction de la période. Reproduit de [34]

On voit en *Figure 14a)* que le coefficient de qualité radiatif est quasi indépendant du paramètre de pertes dans le matériau mais qu'il est en revanche dépendant de la valeur de la période. Si son évolution quadratique pour les grandes périodes est la conséquence de l'évolution quadratique de la densité avec la période, on remarque une forte déviation de cette tendance pour les faibles périodes, conséquence de l'apparition d'un couplage entre MA. En *Figure 14b)*, on remarque que la période qui réalise la condition

de couplage critique vaut 10 nm. Lorsque la période diminue, la valeur du pic d'absorption diminue dans un premier temps, puis augmente lorsque la période devient légèrement inférieure à 200 nm, valeur à partir de laquelle les couplages deviennent significatifs comme le montre la *Figure 14a*). Ainsi, on conçoit que les caractéristiques du désordre employé, qui définit les distances relatives entre MA, agit également sur les conditions de couplage et donc les caractéristiques d'absorption. Ces effets ne sont pas considérés dans le facteur de structure car celui-ci est une grandeur purement géométrique qui ne prend pas en compte le caractère résonant des éléments rayonnants.

Dans la littérature, la compréhension de l'effet du couplage sur les propriétés de résonance plasmonique de NP a fait l'objet d'un intense travail. Dans [65], le spectre d'extinction d'un réseau de dimères de particules cylindriques d'or a été mesuré en fonction de la distance entre les deux NP du dimère. La *Figure 15* montre la géométrie étudiée, et les spectres d'extinction.

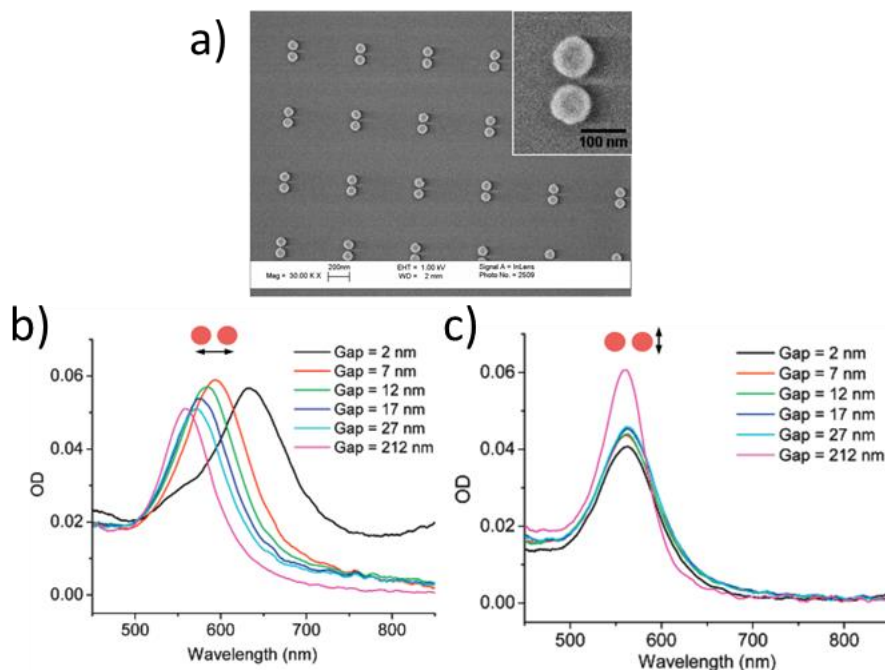


Figure 15 a) Image de microscope électronique à balayage (MEB) des dimères étudiés et Spectre d'extinction du réseau de dimère en fonction de la distance entre les NP pour b) une polarisation incidente dans la direction du dimère et c) perpendiculairement à la direction. Reproduit de [65]

Nous voyons que le couplage entre NP change la fréquence de résonance plasmonique et l'intensité de la résonance. De plus, le couplage est très dépendant de la polarisation incidente : lorsque le champ est dirigé dans la direction du dimère, la diminution de la distance et donc l'augmentation de l'intensité du couplage a pour effet d'augmenter la longueur d'onde de résonance, alors qu'au contraire, la longueur d'onde diminue légèrement lorsque le champ incident est perpendiculaire à la direction du dimère. Cette observation a été notamment confirmée dans [66] où des assemblages colloïdaux de tiges d'or ont été étudiés. Les tiges d'or supportent deux modes de résonance : un mode longitudinal (le plasma d'électrons oscille dans la direction de la longueur de la tige) et un mode transversal (oscillation dans la direction perpendiculaire). Il a été montré une diminution de la longueur d'onde de résonance pour le

plasmon longitudinal, et au contraire une légère augmentation pour le plasmon transversal lorsque les tiges étaient disposées côte à côte, et l'inverse lorsque les tiges étaient placées l'une derrière l'autre. Cela confirme que lorsque les plasmons sont polarisés dans la direction du rapprochement, la longueur d'onde de résonance augmente, et inversement si le plasmon est orthogonal à la direction du rapprochement. Cela permet de comprendre que l'intensité du couplage est plus importante lorsque le couplage a lieu dans la direction de polarisation du plasmon. Une autre étude a été menée dans des réseaux périodiques d'un grand nombre de NP [67]. Dans cet article, il a été montré que si le champ rayonné par les NP du réseau excite de manière cohérente la résonance des autres NP par rapport à l'excitation incidente (la différence de phase entre le champ incident et le champ rayonné par le réseau est inférieure à 90°), la longueur d'onde de la résonance plasmonique des NP est augmentée, tandis que si le champ rayonné est incohérent, la longueur d'onde est diminuée. Ainsi, l'effet du désordre sur les conditions de résonance des MA a été employé dans [68]. Les auteurs ont étudié un MM constitué de MA en configuration MIM. Ils ont étudié l'effet du désordre sur la résonance des modes symétrique et antisymétrique (la symétrie est relative à la direction du courant dans les deux parties métalliques). Nous avons discuté plus haut du rôle du mode antisymétrique dans les propriétés d'absorption des MS. Les auteurs ont introduit du désordre en modifiant la position des MA à partir de la distribution périodique de période p en ajoutant une variable aléatoire de position uniforme dans l'intervalle $[-Dp/2 ; +Dp/2]$, avec D un nombre qui permet de contrôler l'amplitude du déplacement. Les auteurs ont montré que la résonance du mode antisymétrique était peu dépendante de l'introduction du désordre, contrairement au mode symétrique. Ils ont donc étudié les propriétés de résonance du mode symétrique en introduisant du désordre selon une seule des deux coordonnées de l'espace des MA. La *Figure 16a*) montre une distribution obtenue en introduisant du désordre seulement sur la coordonnée horizontale avec un paramètre $D=3$. Ensuite, les coefficients de transmission et de réflexion par le MM ont été mesurés. Les résultats sont montrés en *Figure 16b*) et *c*).

On voit que les coefficients de transmission et de réflexion diminuent lorsque l'on introduit du désordre, et la longueur d'onde de la résonance diminue par rapport à la longueur d'onde en configuration périodique. D'autre part, les courbes de transmission et de réflexion dépendent de la polarisation incidente. Contrairement aux travaux sur les plasmons cités précédemment, un couplage plus intense a été observé dans la direction perpendiculaire à la polarisation. Cette observation n'est pas contradictoire avec les conclusions des précédentes études, dans la mesure où l'on s'intéresse ici au couplage de MA en configuration MIM et non simplement à deux NP. Ainsi, une dégradation plus importante de la résonance est observée lorsque la polarisation est dans la direction perpendiculaire au désordre. Cette étude révèle que le désordre a bien un effet sur le couplage entre MA. En effet, la modification des courbes spectrales de transmission et de réflexion en fonction de la polarisation ne s'explique que par la modification des couplages, puisque la distribution est la même, et donc le facteur de structure est lui aussi inchangé. Ainsi, on voit que le désordre peut modifier à la fois la fréquence, mais aussi le niveau de transmission et de réflexion dans un MM ou une MS.

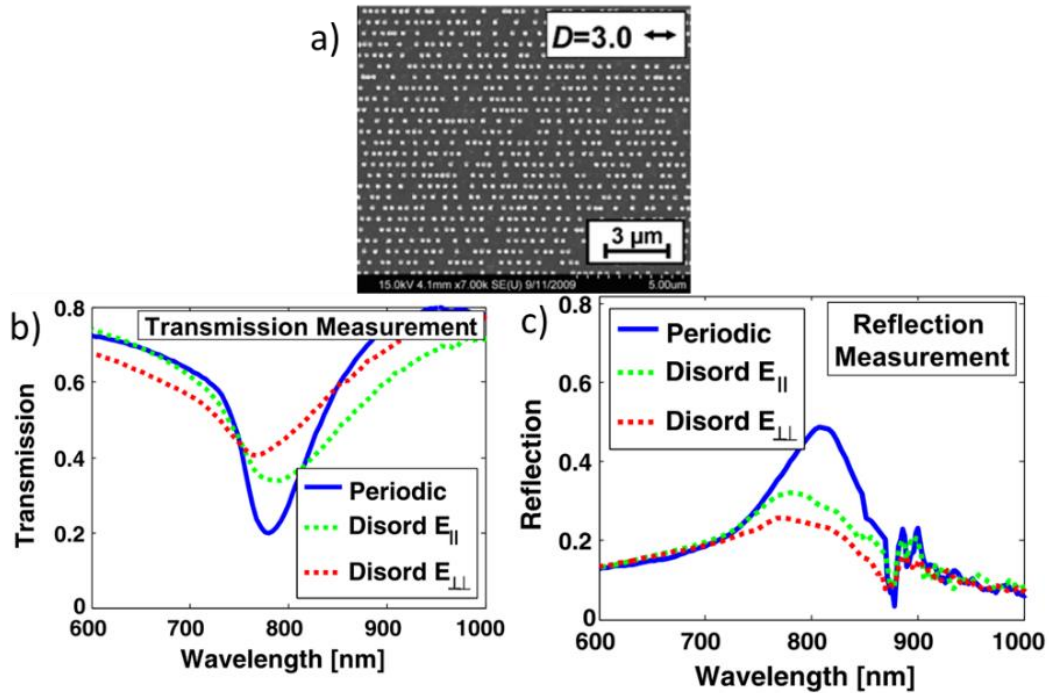


Figure 16 a) Image MEB du MM pour un désordre anisotrope de paramètre $D=3$ b) Coefficient de transmission et c) Coefficient de réflexion du MM pour un paramètre $D=3$ et un désordre anisotrope, pour deux polarisations incidentes différentes. Reproduit de [68].

Enfin, d'autres études ont montré que le couplage entre NP introduisait des modes supplémentaires de résonance. Ces modes sont décrits par la théorie de l'hybridation, qui consiste à exprimer les modes de résonance d'un ensemble de NP couplées à partir des modes de résonance de particules individuelles [69]. En calculant théoriquement l'interaction d'un dimère de NP par la théorie de l'hybridation, les auteurs ont montré dans [70] que ce système possède deux modes de résonance « fondamentaux » d'énergies distinctes, correspondant à une combinaison des résonances fondamentales des NP individuelles : un mode symétrique (bonding) où les NP sont excitées en phase dans leur mode de résonance dipolaire fondamental, et un mode antisymétrique (antibonding) où les NP sont excitées en opposition de phase. La Figure 17a) montre la géométrie étudiée, ainsi que les niveaux d'énergie des modes de résonance. En rouge, apparaissent les niveaux d'énergie des modes de résonance pour chacune des nanosphères individuelles. En bleu, les niveaux d'énergie des modes du dimère. L'orientation des dipôles des nanosphères individuelles est indiquée à côté des lignes représentant le niveau d'énergie des modes fondamentaux ($l=1$) du dimère : le niveau d'énergie le plus haut correspond au mode antisymétrique où les dipôles des deux NP sont orientés en sens contraire, et inversement pour le mode de plus basse énergie. Les lignes en pointillés verts représentent les couplages qui existent entre modes de résonance d'ordre l différent, lorsque la distance D devient très faible : dans ce cas, cette contribution des modes supérieurs diminue l'énergie des résonances fondamentaux. Il est à noter que les modes supérieurs de résonance des particules individuelles sont eux aussi affectés par le couplage.

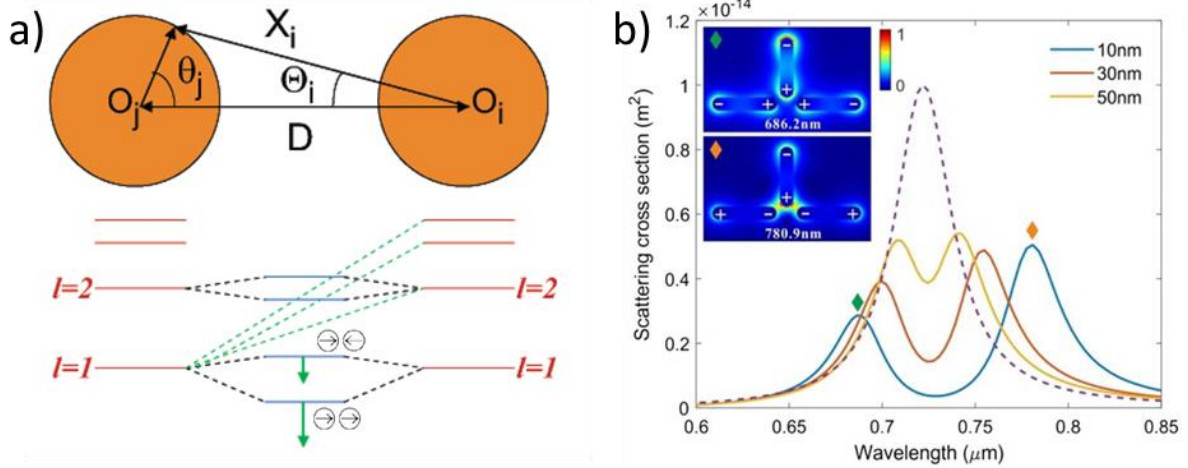


Figure 17 a) Paramètres géométriques du dimère étudié et représentation de l'évolution des énergies des modes de résonance individuels (rouge) et collectif (bleu). Les lignes en pointillé vert représentent l'influence des modes de résonance supérieurs sur l'énergie du mode fondamental ($l=1$). Reproduit de [70] b) Section efficace de diffusion du trimère en fonction de la distance entre la barre verticale et le dimère « sombre ». En encart est représenté le champ dans le trimère ainsi que la répartition des charges électriques. Reproduit de [71]

Dans le cas du dimère, le mode antisymétrique est qualifié de sombre, car le moment dipolaire total est nul : il ne peut être excité par un champ EM incident en champ lointain. Cependant, il a été montré que la présence d'une source de champ proche permettait de générer des modes brillants dans le trimère créé [71]. Les auteurs sont parvenus dans cette étude à exciter deux modes de résonance du trimère via l'excitation du dipôle associé à la résonance plasmonique de la tige métallique perpendiculaire au dimère « sombre ». L'image insérée en haut à gauche de la Figure 17b) montre la configuration, et la section efficace de diffusion du trimère pour différentes distances entre la tige perpendiculaire et le dimère en configuration sombre pour une excitation incidente polarisée dans la direction perpendiculaire (par rapport à l'orientation de l'image). On remarque que deux modes de résonance sont excités dans ce système et que leur énergie se sépare de plus en plus à mesure que la distance diminue, ce qui correspond aux deux configurations « sombres » possibles du dimère horizontal (les deux tiges résonnent en opposition de phase). Ces modes de résonance semblent en réalité être deux modes de résonance particuliers du trimère formé par les trois tiges. En effet, à mesure que le nombre de NP impliquées dans le processus de couplage augmente, le nombre de modes du système augmente. Des chercheurs ont examiné les modes de résonance dans un trimère de nanoparticules en configuration équilatérale [72]. Ils ont montré que le nombre de modes associés à une résonance dipolaire de chacune des NP est 6, dont trois sont dégénérés, contre deux pour un dimère. Une excitation incidente dans le plan du trimère ne permet en revanche de n'exciter que deux de ces six modes, ce qui signifie que certains modes sont sombres. La Figure 18 montre l'énergie des modes d'absorption excités par un champ incident dans le plan du trimère pour une distance du côté du triangle équilatérale formé de $d=21$ nm. Les flèches bleues indiquent les modes fondamentaux excités du trimère. Seuls deux modes fondamentaux sont excités. De plus, la brisure de la symétrie équilatérale du problème fait apparaître des modes supplémentaires. En résumé, le couplage fait apparaître de nouveaux modes de résonance du système, et ce d'autant plus que le nombre de NP mises en jeu dans le couplage est élevé.

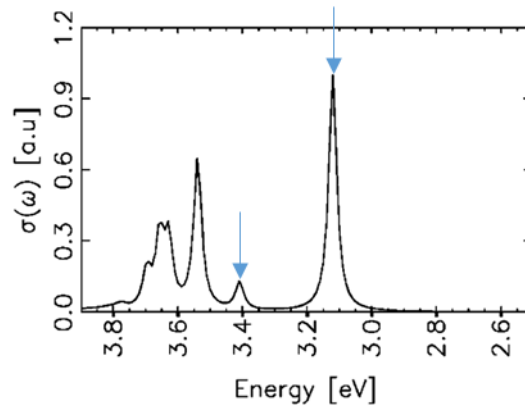


Figure 18 Spectre d'absorption en fonction de l'énergie pour un trimère en configuration équilatérale de distance $d=21$ nm. Reproduit de [72]

Ainsi, on comprend que l'introduction du désordre peut entraîner des conséquences sur le comportement optique des MS. Contrairement aux configurations périodiques où les distances entre MA sont supérieures ou égales à la période, l'introduction du désordre peut potentiellement rapprocher les MA à de plus faibles distances, ce qui entraîne une augmentation du nombre de modes dans la MS comme nous venons de le voir. La position fréquentielle de ces modes dépend de l'intensité du couplage, et ainsi la variété des distances d'interaction dans les distributions désordonnées crée des modes de résonance à des fréquences variées. Ainsi, l'introduction du désordre est un outil de conception intéressant dans les MS et constitue un degré de liberté supplémentaire. En effet, celles-ci ne fonctionnent pas en régime de diffraction contrairement aux cristaux photoniques. Il paraît enfin évident que les propriétés de la MS en présence de désordre dépendent du type de désordre et des caractéristiques de celui-ci. Nous allons voir quelques exemples de travaux qui ont su tirer profit du désordre pour améliorer les propriétés des MS.

1322 Ingénierie du désordre dans les MS

Il est à noter que le désordre, qui traduit la présence de processus aléatoires dans la conception des MS, peut être introduit dans différentes grandeurs caractéristiques des MA de la MS : leur position, certes, mais aussi leur taille et leur orientation, lorsque les MA ne sont pas symétriques de révolution. Ces différents paramètres ont été étudiés dans [73] dans une MS composée de MA d'aluminium sous forme de cylindres ou de tiges, pour modéliser les différents aspects du désordre dans les matériaux amorphes, notamment le verre. Les désordres de position et de rayon sont introduits dans les MS composées de cylindres, tandis que le désordre d'orientation est introduit dans les tiges. Dans chaque cas, le désordre est introduit à partir d'un réseau initial périodique et de MA identiques. Les grandeurs sont perturbées séparément par l'ajout d'un nombre aléatoire réparti uniformément dans l'intervalle $[-x_{\max}; x_{\max}]$, où x désigne la position, le rayon ou la rotation des MA. Chaque MS est conçue pour une valeur d'amplitude maximale x_{\max} croissante. L'effet de chaque type de désordre sur les propriétés de la MS est différent. La Figure 19 montre les résultats expérimentaux et de simulation obtenus.

La Figure 19a) montre la courbe spectrale d'extinction pour un désordre de position d'amplitude maximale variant de 0 à 100 nm par pas de 25 nm, introduit dans une MS de période 250 nm et de diamètre de cylindres 100 nm. Une partie de la MS de désordre d'amplitude maximale 100 nm, appelée dis100 nm, est représentée en encart. La Figure 19b) montre quant à elle la même MS où l'on fait varier seulement le diamètre avec une amplitude maximale de 0 à 20 nm, et l'encart représente la MS d'amplitude 20 nm appelée size20nm. On voit sur les Figure 19a) et b) que les désordres de position et de rayon des cylindres diminuent le maximum et augmentent la largeur spectrale de l'extinction des MS, sans décaler spectralement le maximum, au fur et à mesure que la valeur de x_{\max} augmente. La Figure 19c) représente enfin la MS composée de tiges et dont la rotation d'amplitude maximale est 90° , ainsi que l'extinction de la MS d'amplitude de rotation maximale 0° (à gauche) et 90° (à droite). Les numérotations (e) et (h) viennent de l'article d'origine. Le désordre d'orientation, quant à lui, diminue le maximum d'extinction, mais également rend l'extinction relativement insensible à la polarisation de l'onde incidente pour une valeur $\theta_{\max} = 90^\circ$. Dans le cadre de cette thèse, nous allons nous intéresser au seul désordre de position.

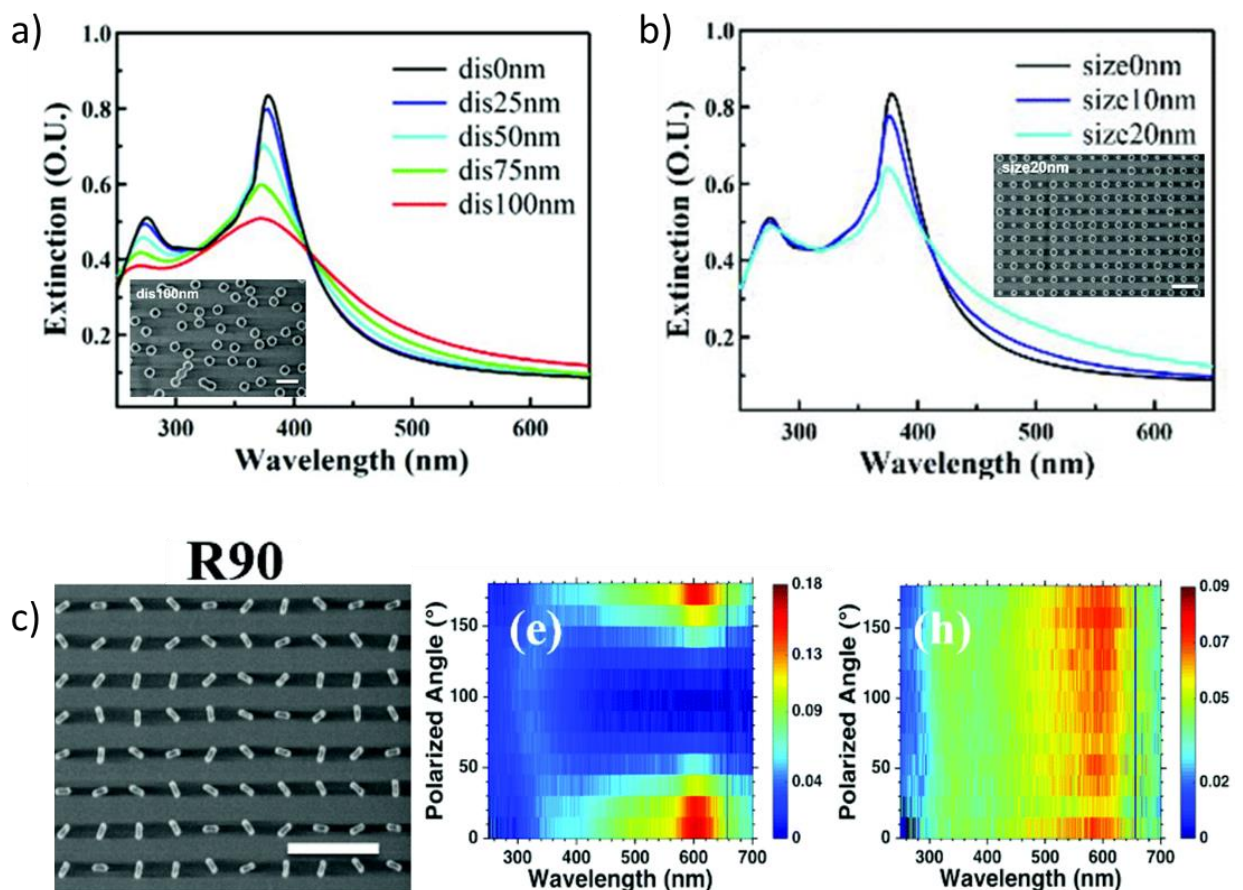


Figure 19 Etude d'une MS de période $p=250$ nm composée de cylindres de rayon $r=50$ nm a) Spectre d'extinction simulé pour différentes amplitudes de déplacement variant de 0 à 100 nm par pas de 25 nm b) Spectre d'extinction simulé pour différentes amplitudes de variation du rayon de 0 à 20 nm par pas de 10 nm et c) Image MEB d'une MS de période $p=400$ nm composée de tiges de longueur 140 nm et largeur 50 nm pour une amplitude de rotation de 90° et Spectre d'extinction de la MS en fonction de la polarisation incidente, pour deux amplitudes différentes de rotation : 0° (milieu) et 90° (droite). Reproduit de [73]

Le désordre de position a été employé dans une MS en configuration MIM pour supprimer la diffraction [74]. En effet, si les ordres de diffraction sont évanescents en incidence normale dans les MS grâce au caractère sub-longueur d'onde de la période, ils deviennent propagatifs aux angles θ d'incidence satisfaisant la relation

$$\lambda_m = \frac{p}{m} (1 - \sin(\theta)) \quad (12)$$

Dans [74], à des angles d'incidence spécifiques, les auteurs ont observé que la résonance de Fabry-Pérot verticale d'une MS contenant des MA sous forme de barres en or est perturbée par le couplage de la résonance avec les ordres de diffraction. Ainsi, l'introduction de désordre par perturbation de la position périodique initiale permet de réduire le couplage entre les ordres de diffraction et la résonance MIM. En effet, lorsqu'un déplacement de loi uniforme des barres métalliques dans un domaine d'amplitude maximale $1 \mu\text{m}$, dans une MS de période $2,6 \mu\text{m}$, est introduit, la résonance MIM n'est pas perturbée contrairement au cas périodique où l'on remarque que l'apparition d'un ordre de diffraction pour $\theta=23^\circ$ perturbe la résonance MIM, comme on peut le voir sur la *Figure 20a*).

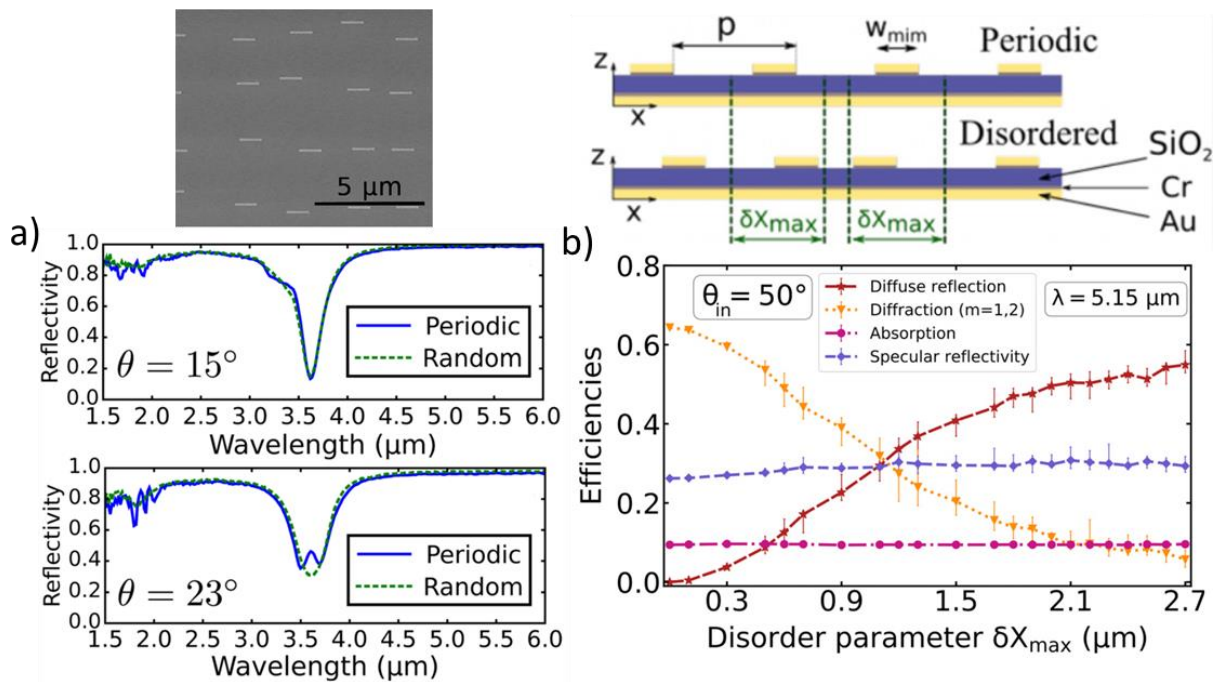


Figure 20 a) Image MEB d'une configuration désordonnée associée à une amplitude maximale de déplacement $1\mu\text{m}$, et spectres de réflexion pour un angle θ d'incidence de 15° et 23° . Reproduit de [74] b) Géométrie étudiée et répartition de l'énergie incidente dans la MS pour différentes amplitude de déplacement à $\lambda=5,15\mu\text{m}$ et un angle d'incidence $\theta=50^\circ$. Reproduit de [75]

Dans [75], la répartition du champ EM interagissant avec un réseau MIM de rubans de largeur $1,35 \mu\text{m}$ et de période $7,5 \mu\text{m}$, infiniment étendus dans la direction de leur longueur (voir *Figure 20b*) haut), est étudiée. Une résonance à $\lambda=5,15 \mu\text{m}$, caractérisée par une faible réflexion spéculaire, est identifiée dans la structure. La répartition du champ entre réflexion spéculaire, diffraction, réflexion diffuse et absorption est calculée et représentée en *Figure 20b*) bas, en fonction de la quantité de désordre. Le désordre est introduit en ajoutant un déplacement aléatoire suivant une loi uniforme dans un intervalle

d'amplitude δX_{\max} (voir *Figure 20b*) haut). L'introduction de désordre permet de convertir l'énergie réfléchi majoritairement par diffraction, en énergie diffusée, à mesure que le déplacement δX_{\max} augmente. Dans [76], les conditions d'interférence du champ diffusé par une MS désordonnée composée de particules d'argent ou de silicium disposées aléatoirement sont étudiées. Plus particulièrement, la contribution des composantes spéculaire et diffuse du champ réfléchi sur l'apparence de la MS est évaluée en fonction des conditions d'observation et d'éclairage. Lorsque des NP de silicium sont posées aléatoirement directement sur le substrat de verre, les auteurs ont observé une iridescence de la composante spéculaire uniquement du champ diffusé. En implémentant des corrélations dans les positions des NP par l'introduction de distances d'exclusion minimales, les conditions d'interférence suppriment le champ diffusé dans la direction spéculaire et l'augmentent dans des directions non spéculaires, ce qui crée un effet de halo de lumière autour de la direction spéculaire, effet que les auteurs ont baptisé « halo diffus ». Ils ont montré de plus que cet effet est complètement expliqué par des considérations sur le facteur de structure de la MS. Enfin, les auteurs ont prouvé que les conditions d'interférence pouvaient être contrôlées également en introduisant une couche intermédiaire supplémentaire entre le substrat et les NP, ce qui permet de créer des effets visuels originaux à partir du champ diffusé, effet que les auteurs ont qualifié d'iridescence diffuse.

Si l'ingénierie du désordre de position permet de contrôler les propriétés du champ réfléchi par une MS, il peut également être employé pour contrôler l'absorption des MS. Il a ainsi été exploité dans différentes études s'intéressant à l'absorption dans les MS MIM [77], [78], [79]. L'absorption d'une MS MIM composée d'anneaux d'acier a été étudiée dans [77] dans des distributions périodiques et désordonnées, dans le domaine micro-ondes. L'épaisseur très sub-longueur d'onde de la MS ($\lambda/40$) la place dans le régime de couplage entre les anneaux et le plan de masse, qui est responsable de l'absorption. La MS est donc très résonante. En configuration périodique, la largeur du spectre d'absorption est donc très étroite. Il est montré à la fois numériquement et expérimentalement que l'introduction du désordre permet d'augmenter la largeur de bande d'absorption, et ce d'autant plus que la densité est grande. La *Figure 21* montre les résultats expérimentaux. Dans un domaine de $21 \times 29,7 \text{ cm}^2$, un nombre d'anneaux croissant est introduit suivant une distribution de Poisson (les anneaux sont empilés lorsqu'ils se recouvrent, voir *Figure 21a*) pour une distribution de 371 anneaux). Les résultats expérimentaux montrent un étalement spectral de l'absorption par la structure à mesure que le nombre d'anneaux augmente, comme le montre la *Figure 21b*). Cet effet est attribué dans l'article au fort couplage qui existe entre les résonances MIM individuelles. En effet, il est observé que les regroupements spatiaux de plusieurs résonateurs MIM ont tendance à résonner à des fréquences plus faibles.

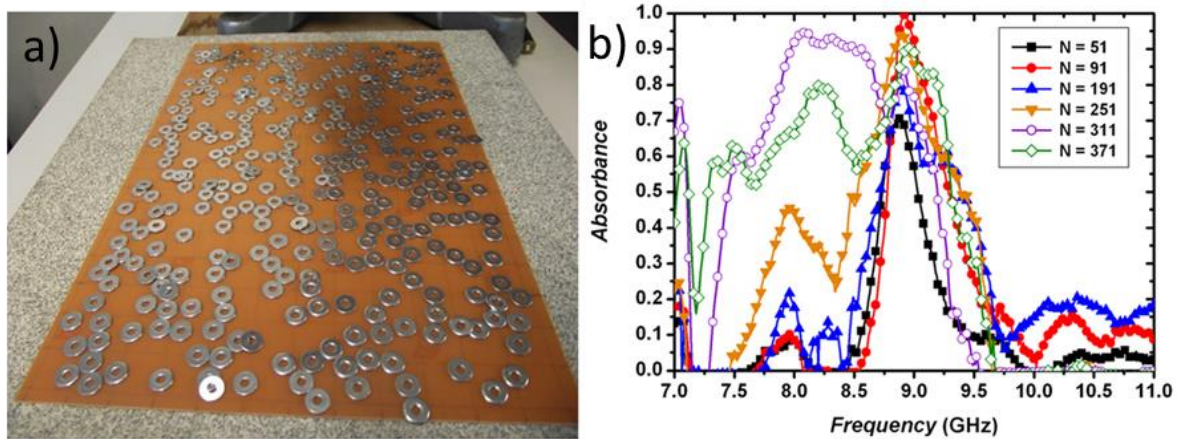


Figure 21 a) Exemple d'une MS de dimension $21 \times 29,7$ cm² composée de 371 anneaux b) Spectre d'absorption en fonction du nombre d'anneaux. Reproduit de [77]

Dans [78], l'effet de la densité d'une distribution de Poisson sur l'absorption d'une MS MIM composée de disques de métal est étudiée aux fréquences micro-ondes. Dû à la fusion des disques lorsque la densité augmente (voir Figure 22a)), le nombre d'éléments résonants présente un maximum en fonction de la densité (voir Figure 22b)). Les auteurs ont évalué l'absorption moyenne et maximale de la MS en comptabilisant le nombre de MA isolés. L'absorption maximale des MS est atteinte pour une densité proche de la densité qui maximise le nombre de MA isolés.

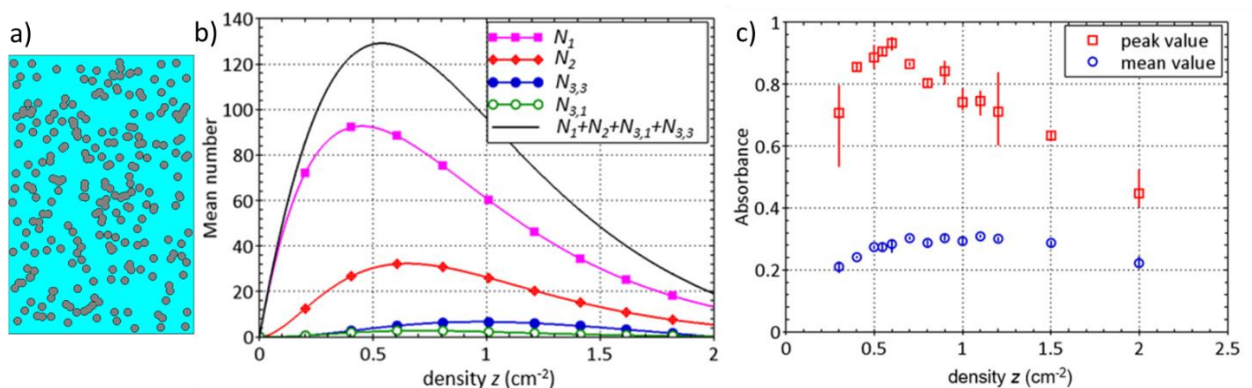


Figure 22 a) Exemple d'une distribution de disques de rayon $r=4,2$ mm de densité $z=0,45$ cm⁻² sur une surface de 20×30 cm² b) Nombre d'éléments résonants en fonction de la densité classés en fonction du nombre de disques superposés et c) Absorption maximale et moyenne en fonction de la densité. Reproduit de [78]

Enfin, dans [79], les propriétés d'absorption d'une MS de distribution hyperuniforme des MA sont évaluées. En comparaison, une distribution de Poisson est également étudiée. Pour chacune des densités étudiées numériquement et expérimentalement, il est observé que l'augmentation de l'amplitude des déplacements permet d'augmenter la largeur de bande d'absorption. A partir d'une certaine amplitude de déplacement, le spectre d'absorption des distributions hyperuniformes deviennent très semblables au spectre de la distribution de Poisson, mais l'avantage des distributions hyperuniformes est la plus grande homogénéité spatiale de la résonance.

Ces trois études soulignent chacune le rôle de la densité vis-à-vis de l'introduction de désordre. L'introduction de désordre ne peut en effet avoir de rôle significatif dans l'augmentation de la largeur

de la bande d'absorption que dans un régime de fort couplage entre résonateurs MIM. Or, ce régime est favorisé pour de fortes densités de résonateurs.

1323 Procédés de fabrication spécifiques au désordre

Enfin, il est important de noter que le relâchement des contraintes de position des MA sur les MS permet d'envisager des techniques de fabrication plus rapides et moins coûteuses. Contrairement aux distributions périodiques où les positions des MA sont imposées et ainsi les techniques top down de lithographie sont majoritairement utilisées, avec l'approche désordonnée, il existe de très nombreuses configurations associées à la même distribution aléatoire. Ce degré de liberté peut être exploité en fabrication comme nous allons le voir maintenant. Dans [80], des MA cubiques d'argent en solution colloïdale ont été déposés par adsorption sur la surface d'un polymère diélectrique. La densité de MA d'argent est contrôlée par la durée d'adsorption et la concentration de la solution. Ce procédé permet de générer des distributions spatiales de MA assez homogènes, comme le montre la *Figure 23a*). Dans la mesure où les MA présents dans la solution sont de taille non homogène, le niveau de réflexion est augmenté par rapport aux prédictions numériques. Dans l'étude, en augmentant la densité des MA sur la surface de 7,3% à 17,1%, comme on peut le voir sur la *Figure 23b*) où la courbe épaisse correspond à la densité de 7,1% et la courbe fine 17,1%, les auteurs ont pu minimiser la réflexion par la MS malgré ces conditions.

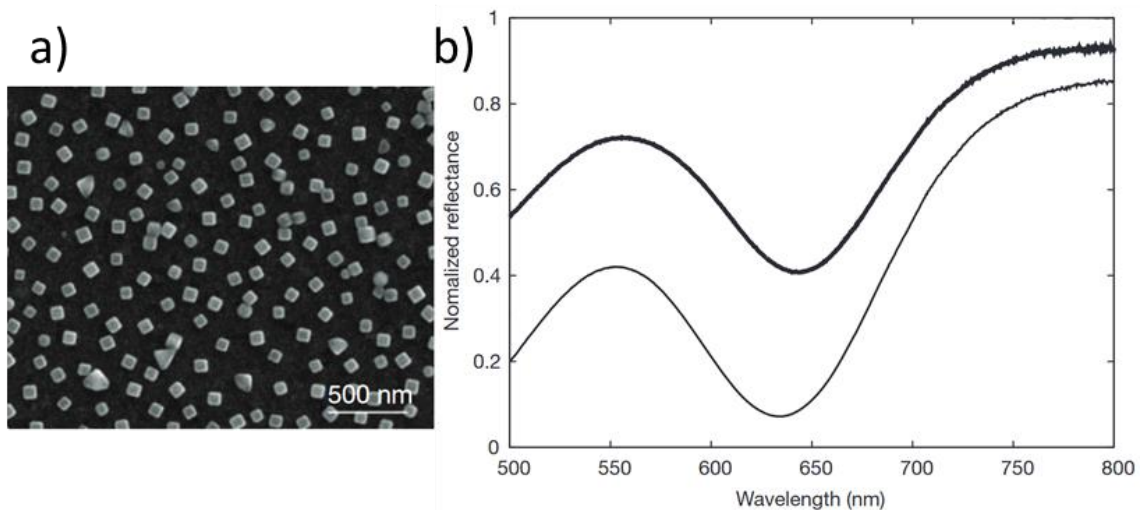


Figure 23 a) Image MEB d'une partie de la distribution des MA cubiques de densité 17,1% b) Spectre de réflexion pour une densité de 7,3% (courbe épaisse) et 17,1% (courbe fine). Reproduit de [80]

Dans [81], une MS MIM de large bande d'absorption (83% d'absorption moyenne dans le domaine [370 ; 880] nm) est obtenue par contrôle du temps d'évaporation de la couche supérieure. En fonction de ce paramètre, les MA obtenus sont de plus en plus denses sur la surface et tendent à s'agréger, comme illustré sur la *Figure 24a*). En contrôlant ce temps d'évaporation, les auteurs ont pu choisir la densité maximisant l'absorption sur la bande d'intérêt, comme le montre la *Figure 24b*). L'inconvénient de la technique est que la densité et l'épaisseur de la couche ne sont pas contrôlées indépendamment.

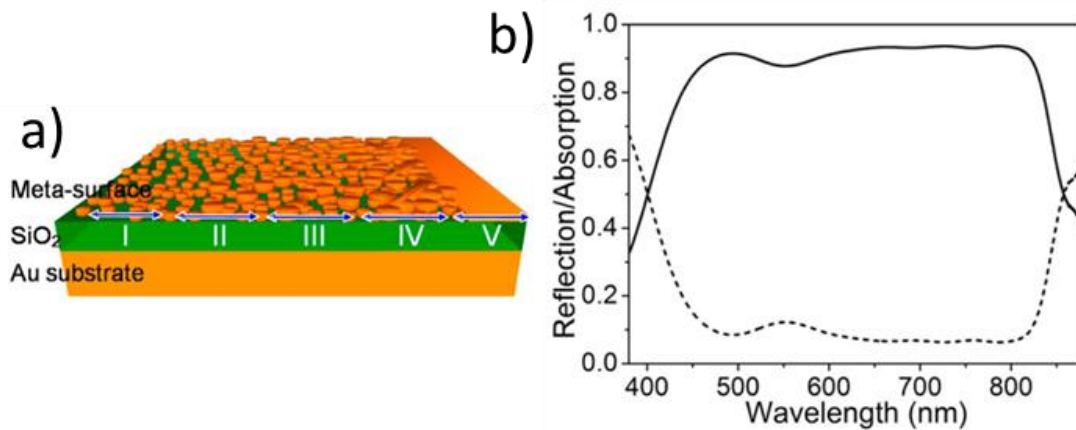


Figure 24 a) Schéma des différents stades de formation des MA en fonction du temps de déposition b) Spectres d'absorption (ligne continue) et de réflexion (ligne pointillée) pour la MS d'épaisseur 7 nm de la couche supérieure. Reproduit de [81]

Il est à noter que la démarche inverse, consistant à fabriquer des structures ordonnées à partir d'une structuration désordonnée de MA, a aussi été montrée, notamment dans [82], où un dépôt désordonné d'or obtenu par évaporation est rendu plus régulier par fusion de l'or sous l'action d'un laser de puissance bien choisie. Cela permet au contraire d'envisager la fabrication de structures ordonnées par auto-assemblage à partir du désordre.

Enfin, un des défis actuels concernant la fabrication bottom-up par auto-assemblage consiste à trouver des moyens de contrôler plus finement les caractéristiques du désordre pour permettre une ingénierie du désordre aussi fine qu'avec les procédés top-down. Cet objectif est loin d'être réalisé à l'heure actuelle, mais certaines avancées sur la compréhension des conditions expérimentales qui permettent la fabrication de structures présentant un désordre corrélé ont été réalisées. Dans [83], il a été montré que la densité de collagène dans un milieu organique jouait un rôle dans les propriétés de transparence du milieu. Cette propriété a été attribuée à l'apparition d'un ordre partiel dans l'organisation microscopique des molécules de collagène. Ainsi, en contrôlant la densité de collagène, des matrices présentant un ordre partiel ont été fabriquées artificiellement.

I4 Présentation du projet ANR RANDOM

Ce travail s'inscrit dans le contexte global du projet RANDOM financé par l'Agence Nationale de la Recherche (ANR). L'objectif de ce projet est de concevoir un dispositif opto-mécanique basé sur des structures qui présentent à la fois les propriétés de MS photoniques et phononiques. On appelle ces structures des structures phoXoniques (regroupant les termes photoniques et phononiques en un seul). En effet, il est connu que la propagation d'une onde acoustique dans un matériau peut modifier les propriétés EM du matériau et inversement. Ces effets sont appelés l'effet photoélastique et d'électrostriction dans les matériaux habituels [84]. L'effet photoélastique décrit la modification des propriétés EM sous l'action d'une excitation élastique. La mise en mouvement des porteurs de charges dans la matière induit une modification de la permittivité du matériau. Dans [85], cet effet a permis de

moduler la fréquence des modes optiques dans un cristal phoXonique. Les effets de la propagation d'une onde acoustique s'observent également aux interfaces (effet d'interface mobile). Dans ce cas, l'onde acoustique perturbe localement l'interface entre deux matériaux, et crée une zone mobile où la permittivité varie entre celles des deux matériaux de l'interface. Inversement, des photons peuvent créer des contraintes mécaniques sur un matériau : ce sont les effets d'électrostriction (en volume) et pression radiative (en surface). En résumé, les ondes acoustique et mécanique dans un matériau peuvent interagir, ce qu'on appelle le couplage optomécanique (OM).

Dans les MM et MS, ces effets sont plus riches puisqu'en plus d'agir sur la matière à l'échelle des atomes, les ondes photoniques et phononiques agissent sur le comportement des MA. On peut donc modifier les propriétés des MM ou MS de cette manière. Par exemple, dans nos structures, une onde acoustique peut induire une déformation des MA MIM, et ainsi changer leur comportement d'absorption. En configuration périodique par exemple, l'onde acoustique va permettre de moduler dans le temps la forme des piliers et donc de modifier leurs dimensions géométriques. Ainsi, on peut s'attendre à ce que les modes de résonance soient variables en fonction du temps sur une période d'oscillation de l'onde mécanique. Ces effets sont intéressants car ils permettent de se donner des degrés de liberté supplémentaires pour contrôler le comportement EM d'une MS. C'est l'objet du projet RANDOM dont l'objectif final est de réaliser un système OM.

En général, pour réaliser un couplage OM il est utile de localiser spatialement des ondes acoustiques et optiques au même endroit dans une structure. Plus les ondes sont concentrées, plus elles peuvent échanger de l'énergie en se couplant et plus les effets des interactions seront mesurables. La localisation des deux types d'onde a été démontrée dans les cristaux photoniques et phononiques (cristaux phoXoniques), présentant une bande interdite de propagation à la fois aux ondes EM et mécaniques. Lorsque l'on crée des cavités dans les structures périodiques, les ondes photoniques et phononiques vont se confiner et interagir. La nouveauté du projet consiste à employer non pas une structure périodique avec des défauts mais une structure désordonnée afin d'obtenir de nouvelles possibilités de localisation. Ici, nous emploierons une MS, ce qui permet de réduire les volumes d'interaction OM et ainsi stimuler les couplages. Dans cette MS, l'élément central est le MA MIM cylindrique (pilier/isolant/plan de masse). Le MA est la structure qui permet de faire le lien entre effets optiques et acoustiques : comme on l'a décrit précédemment, ce pilier permet de localiser le champ EM par une résonance MIM. Il peut également être excité par une onde acoustique. La *Figure 25* montre la répartition de l'intensité du champ électrique *Figure 25a*) et du champ élastique *Figure 25b*) à quatre fréquences différentes pour une distribution simulée dans le projet. On voit que l'intensité maximale des champs électrique et élastique se situe au niveau des MA.

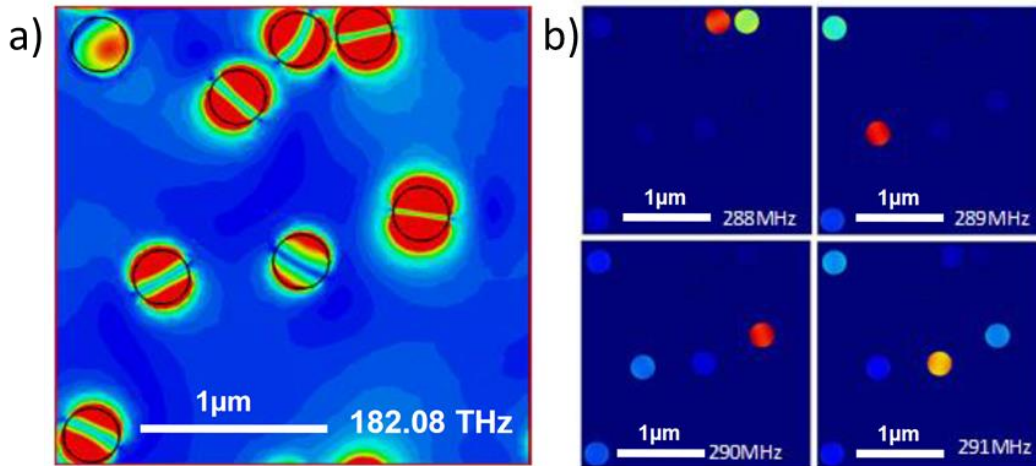


Figure 25 Répartition typique des champs a) électrique et b) élastique dans une structure phoXonique. La couleur rouge indique les endroits de forte intensité des champs

Ainsi, dans notre structure, les MA MIM permettent de localiser les champs, condition nécessaire pour le couplage OM, comme ce qui a été traité dans les cavités des cristaux phoXoniques. L'introduction du désordre semble pertinente dans ce cadre : d'abord, d'un point de vue optique, le désordre, comme on l'a vu dans le paragraphe précédent, peut créer des agrégats de piliers sur la MS et par couplage en champ proche, modifier l'amplitude du champ EM confiné dans des espaces restreints, qu'on appelle communément des points chauds. D'un point de vue acoustique, le désordre de position des piliers peut également créer des effets de localisation des ondes dans des zones de piliers spécifiques en fonction des diffusions multiples dans le milieu complexe formé, mécanisme qui peut s'apparenter à de la localisation d'Anderson [86]. Cependant, les mécanismes de localisation ne sont pas encore entièrement compris à l'heure actuelle et une des questions à résoudre est de savoir si le mécanisme de localisation d'Anderson est bien en jeu dans la localisation observée dans les MS désordonnées. Il sera également utile d'évaluer l'effet de l'introduction des corrélations dans le désordre sur ces deux phénomènes ondulatoires, ce que nous ferons en employant une méthode de perturbation de réseaux périodiques, procédure générant des distributions hyperuniformes de piliers. Comme nous l'avons vu au paragraphe I321, les distributions hyperuniformes de diffuseurs individuels permettent de réduire la diffusion par l'ensemble des diffuseurs, et sont ainsi adaptées à notre problématique.

Dans une perspective applicative, le choix premier est d'étudier la structure aux fréquences des télécommunications (longueur d'onde autour de 1,55 μm). Néanmoins, le dispositif expérimental utilisé pour faire les mesures que nous décrirons au chapitre III repose sur l'utilisation d'un laser de longueur d'onde centrale 800 nm. Le circuit optique de mesure est donc optimisé à cette longueur d'onde. Il s'agit par conséquent de dimensionner la structure MIM pour fonctionner autour de 800 nm, dans le domaine du visible. Ce design sera détaillé au chapitre II. Compte tenu de cette fréquence, nous avons choisi l'or comme matériau pour les parties métalliques. Il s'agit d'un matériau très répandu pour les utilisations en plasmonique car il ne s'oxyde pas facilement contrairement à l'aluminium par exemple.

Le projet est partagé entre plusieurs équipes, réparties dans quatre laboratoires différents. L'étude des MS acoustiques est réalisée dans l'équipe EPHONI de l'IEMN (Villeneuve d'Ascq) sous la direction de Yan Pennec à travers la thèse de Rock Akiki pour la partie modélisation numérique et théorique, et à l'institut des Nanosciences de Paris (INSP) pour la partie expérimentale sous la direction de Bernard Bonello, à travers la thèse de Thibault Deletang. L'étude du comportement optique est quant à elle conduite dans les laboratoires de l'Institut Carnot de Bourgogne sous la direction de Benoît Cluzel qui a travaillé avec Thibault également, et à l'IEMN sous la direction d'Eric Lheurette, ce qui a constitué mon travail de thèse. Enfin, l'analyse statistique des distributions de piliers auxquelles nous nous sommes intéressées a été menée au laboratoire Painlevé de Villeneuve d'Ascq sous la direction de David Dereudre.

Ici, notre contribution à ce projet dans l'équipe SUBLAMBDA de l'IEMN a été d'étudier les propriétés d'absorption de la MS. L'originalité du travail est de pouvoir optimiser l'absorption sur une large bande spectrale en gardant intacte la forme des MA cylindriques (les piliers en configuration MIM), car ce paramètre est crucial au regard des propriétés mécaniques de vibration. Ici, l'optimisation de l'absorption est réalisée par ingénierie des couplages entre piliers. L'enjeu de la conception de la MS d'un point de vue optique est de maximiser le niveau d'absorption dans la structure, en vue de maximiser le couplage OM.

15 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons défini les concepts de métamatériaux et de plasmonique. Nous avons décrit différents types de désordre, qui peuvent être caractérisés par leur facteur de structure. Les faibles volumes des métasurfaces comparées aux métamatériaux, ainsi que le fort confinement du champ électromagnétique caractéristique des plasmons, font des métasurfaces plasmoniques des plateformes efficaces pour absorber le champ électromagnétique. En particulier, la configuration métal-isolant-métal a été employée dans la littérature, tant aux fréquences optiques que microondes. L'absorption dans ces métasurfaces repose sur le couplage électromagnétique entre les deux interfaces métal/isolant, qui crée une résonance dans le méta-atome lorsque l'épaisseur de la couche isolante est suffisamment faible. En configuration périodique, l'intégralité du champ électromagnétique incident est absorbée à la condition dite de couplage critique. Nous avons ensuite étudié comment le désordre modifiait les propriétés d'absorption dans ce système. En effet, il agit d'une part sur les conditions de couplage du champ rayonné par les méta-atomes, ce qui influe sur le niveau de diffusion de la métasurface. Ce phénomène est relié au facteur de structure de la distribution des méta-atomes. Cela explique pourquoi les distributions hyperuniformes d'objets diffusants ont été employées dans certaines études pour réduire voire supprimer la diffusion par des ensembles de diffuseurs. D'autre part, l'introduction de désordre modifie les conditions de résonance de chaque résonateur, car lorsqu'ils sont excités, ils agissent comme une source secondaire de champ qui excite à son tour les autres résonances. Contrairement aux configurations périodiques, cette excitation ne se produit plus en phase, ce qui fait apparaître des modes

supplémentaires de résonance dans la métasurface. La fréquence propre de ces modes est modélisée par la théorie de l'hybridation. Cela justifie notamment l'élargissement de la bande d'absorption qui a été observée dans des travaux de la littérature utilisant le désordre dans la conception des métasurfaces absorbantes. Au-delà des possibilités accrues par les degrés de liberté qu'offre le désordre, l'émergence de techniques d'auto-assemblage variées rend plus attractif le recours aux métasurfaces désordonnées grâce à une baisse de leur coût de fabrication. Ainsi, les métasurfaces métal-isolant-métal désordonnées semblent pertinentes pour optimiser le couplage opto-mécanique, car l'énergie électromagnétique est confinée dans des volumes très restreints.

Chapitre II : Conception et simulation des métasurfaces

II1 Introduction

Ce chapitre est dédié à l'étude numérique de l'absorption des métasurfaces métal-isolant-métal en présence de désordre. Cette approche numérique est nécessaire car le système sera complexe avec des processus de couplages multiples qui sont difficiles à appréhender par des approches analytiques. Dans un premier temps, nous allons détailler les méthodes et outils mis en œuvre dans ce travail. Nous commencerons par la méthode des éléments finis qui sera employée par l'intermédiaire du logiciel CST Microwave Studio® pour l'ensemble des simulations dans le domaine fréquentiel. Nous exposerons ensuite les étapes de mise en place des conditions de simulation, puis nous décrirons les méthodes d'introduction de désordre, et la caractérisation des distributions obtenues par le facteur de structure. Nous expliquerons alors comment calculer l'absorption et l'extinction des métasurfaces à partir des simulations. Ensuite, les résultats numériques seront présentés et discutés. Nous étudierons d'abord la configuration périodique qui servira de situation de référence. Puis nous présenterons les résultats d'absorption en fonction de l'amplitude du désordre, pour différentes densités de résonateurs. Enfin, ces résultats seront éclairés par des simulations complémentaires menées dans des distributions désordonnées particulières qui mettront en lumière les mécanismes physiques mis en jeu.

II2 Présentation de l'outil numérique

II21 Méthode des éléments finis (MEF)

Afin de réaliser l'étude du comportement des MS soumises à une excitation électromagnétique, on utilise le logiciel de simulation électromagnétique CST Microwave Studio. C'est un logiciel qui calcule la valeur du champ EM à l'intérieur d'un domaine spatial de simulation, en calculant les solutions des équations de Maxwell pour le champ électrique \mathbf{E} et magnétique \mathbf{H} . La formulation macroscopique calculée comme une moyenne des relations microscopiques où les positions et vitesses des charges sont décrites individuellement, s'écrit dans le domaine fréquentiel :

$$\nabla \mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega) = 0 \quad (13)$$

$$\nabla \mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega) = \rho(\mathbf{r}, \omega) \quad (14)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -i\omega \mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega) \quad (15)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = -i\omega \mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) \quad (16)$$

, où ∇ est l'opérateur nabla qui s'exprime en coordonnées cartésiennes par exemple : $\nabla = \frac{\partial}{\partial x} \mathbf{x} + \frac{\partial}{\partial y} \mathbf{y} + \frac{\partial}{\partial z} \mathbf{z}$. Les champs décrits par ces relations moyennées ont l'avantage de ne pas présenter de variations brutales à l'échelle des constituants de la matière, mais permettent plutôt de décrire la réponse de l'ensemble d'un matériau. Dans ces équations, ρ est la densité de charges et \mathbf{J} la densité de courants, \mathbf{D} et \mathbf{B} sont respectivement le déplacement électrique et l'induction magnétique, \mathbf{r} est le vecteur de

position, et ω la pulsation. Les grandeurs \mathbf{D} et \mathbf{B} sont liées aux champs électrique et magnétique à travers la réponse électromagnétique des matériaux, modélisée par les tenseurs de permittivité ϵ et de perméabilité μ , par les relations dites « constitutives » des matériaux, qui s'expriment, dans le cas d'un milieu linéaire et isotrope par exemple :

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon(\mathbf{r}, \omega)\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \quad (17)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega) = \mu(\mathbf{r}, \omega)\mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) \quad (18)$$

Cet ensemble constitue un système d'équations aux dérivées partielles (EDP) fermé qui permet de calculer \mathbf{E} et \mathbf{H} à partir des termes de source \mathbf{J} et ρ . On peut par exemple obtenir l'EDP suivante pour le champ \mathbf{E} :

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) - k_0^2 \epsilon(\mathbf{r}, \omega)\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = i\mu_0 \omega \mathbf{J}(\mathbf{r}, \omega) \quad (19)$$

Cette équation permet en principe d'obtenir l'expression du champ \mathbf{E} . Cependant, résoudre ce problème de manière analytique est extrêmement difficile ; il n'existe pas de formulation mathématique explicite pour exprimer les solutions \mathbf{E} et \mathbf{H} dans le cas général. Il faut, sauf dans des cas particuliers très simples, se contenter d'une résolution numérique approchée de ces équations. Il existe différentes méthodes numériques pour résoudre des équations différentielles aux dérivées partielles, comme c'est le cas des équations de Maxwell. Parmi elles, les méthodes des différences finies et des éléments finis et leurs dérivées sont les plus utilisées. Nous utilisons ici le solveur fréquentiel de CST dans la suite de cette étude, qui est adapté à la simulation de structures résonantes. Ce solveur repose sur la MEF pour réaliser le calcul.

Cette méthode permet de calculer une approximation d'une fonction inconnue dont la loi d'évolution est caractérisée par une équation aux dérivées partielles, et de conditions aux limites.

La MEF consiste dans un premier temps à réécrire l'équation aux dérivées partielles (ici les équations de Maxwell), sous une forme appelée « faible », qui est la forme intégrée de l'équation de départ qu'on a multipliée au préalable par une fonction arbitraire notée usuellement v et appelée fonction de test. On intègre l'EDP sur l'ensemble du domaine où on cherche la valeur de la fonction inconnue. Cette formulation est en général équivalente à la formulation sous forme d'EDP. Ici, on intègre l'EDP sur un domaine spatial à trois dimensions, où on cherche la valeur du champ électrique $\mathbf{E}(x,y,z)$ et magnétique $\mathbf{H}(x,y,z)$. En regroupant les termes qui dépendent de l'inconnue du problème à gauche de la formulation « faible » (on l'appelle aussi formulation variationnelle) de l'EDP, et à droite les termes qui dépendent des données du problème, c'est-à-dire ici les termes sources \mathbf{J} et ρ , on obtient généralement la forme suivante de l'équation :

$$\forall v, a(u, v) = l(v) \quad (20)$$

Ici, v est la fonction arbitraire de test, et u est la fonction inconnue, elle représente \mathbf{E} ou \mathbf{H} dans notre cas. La quantité $l(v)$ dépend des grandeurs connues du problème, qui sont \mathbf{J} et ρ pour les équations de

Maxwell. Les fonctions a et l sont des opérateurs intégraux liés à l'écriture sous forme faible de l'EDP de départ, respectivement bilinéaire et linéaire. Sous ces conditions, ce problème admet une unique solution par le théorème de Lax-Milgram. Il est à noter que cette formulation variationnelle contient par construction les conditions aux limites du problème.

On procède ensuite à une découpe du domaine spatial en petits morceaux polygonaux appelés mailles, dans lesquels la fonction inconnue u et la fonction de test v pourront être approximées par des fonctions u_h, v_h , qui sont des solutions approchées du problème suivant :

$$\forall v_h, a(u_h, v_h) = l(v_h) \quad (21)$$

De cette façon, l'espace des fonctions d'approximation u_h et v_h est de dimension finie, ce qui simplifie beaucoup la résolution du problème comme nous allons le voir. L'ensemble des mailles doit réaliser un pavage de l'espace de simulation. Chaque maille est constituée de nœuds qui sont des points particuliers au bord de la maille. La solution approchée u_h est définie par sa valeur sur l'ensemble des nœuds du maillage. On définit aussi des contraintes supplémentaires sur la fonction u_h pour garantir qu'elle sera définie de façon unique par sa valeur sur les sommets du maillage uniquement ; on choisit par exemple qu'elle soit linéaire sur chaque maille, ce qui est raisonnable dans la mesure où les mailles sont suffisamment petites. Si on travaille sur un domaine 3D où les mailles sont choisies de forme tétraédrique, la fonction u_h sera ainsi définie de manière unique sur chaque maille par sa valeur aux quatre nœuds de chaque maille car si elle est linéaire, elle s'exprime sous la forme $u_{hM}(x,y,z)=ax+by+cz+d$, où u_{hM} est la restriction de u_h à la maille M , et x, y, z sont les coordonnées dans la maille. La fonction u_{hM} , définie par les coefficients a, b, c et d , est donc définie de manière unique par ses valeurs sur les quatre sommets de la maille tétraédrique. Comme la fonction u_h est définie sur N points (si on note N le nombre total de points du maillage), l'espace des fonctions possibles est de dimension N , on peut donc décomposer u_h sur un ensemble de taille finie de fonctions qui constituent une base de cet espace, notons-les $\varphi_i, i=1,2,\dots,N$. Par exemple, une base qui convient dans le cas d'une modélisation par fonctions linéaires sur chaque maille, serait l'ensemble des fonctions qui valent 1 sur un sommet et 0 sur tous les autres. L'intérêt de cette décomposition est que l'on peut finalement réécrire la formulation variationnelle approchée à partir des vecteurs de cette base :

$$\forall i = 1, 2, \dots, N, \sum_{j=1}^N a(\varphi_i, \varphi_j) u_j = l(\varphi_i) \quad (22)$$

Les coefficients u_j sont les coefficients de la décomposition de u_h dans la base φ_i . En notant A la matrice de taille $N \times N$ contenant les valeurs $a(\varphi_i, \varphi_j)$, U la matrice de taille $1 \times N$ contenant u_i , et B la matrice de taille $1 \times N$ contenant les valeurs $l(\varphi_i)$, pour i et j variant entre 1 et N , on se ramène à la résolution du système linéaire suivant, $AU = B$, où les inconnues U sont les coefficients de la décomposition u_j de u_h dans la base. On en déduit la valeur approchée de u_h recherchée :

$$u_h = \sum_{i=1}^N u_i \varphi_i \quad (23)$$

Ce problème est facile à résoudre d'un point de vue numérique, d'autant que la matrice A construite de cette manière est en général creuse, c'est-à-dire que la majorité de ses coefficients sont nuls.

Nous allons montrer dans la suite comment mettre en place concrètement la MEF sous CST. Pour que le problème de résolution par éléments finis soit correctement défini, nous avons vu qu'il s'agit de spécifier pour CST, un maillage de l'espace, de définir les conditions aux bords du domaine, et de modéliser les sources d'excitation du système. Ce sont ces notions que nous allons désormais détailler dans les paragraphes suivants.

II.2.2 Choix du maillage dans CST

Une cellule élémentaire d'un exemple de structure simulée ainsi que les dimensions correspondantes est schématisée en *Figure 26*. Nous justifierons le choix des dimensions géométriques dans la suite.

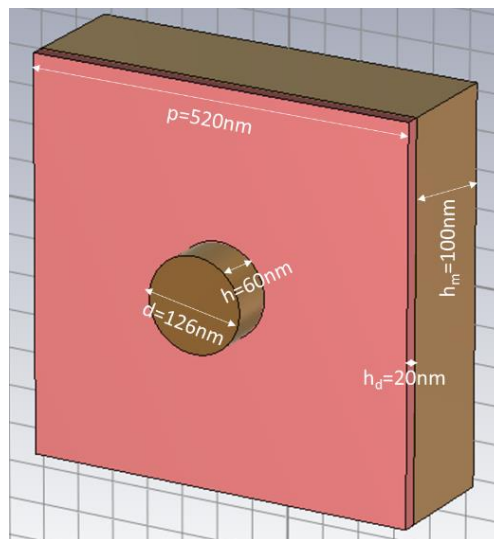


Figure 26 Maille élémentaire et dimensions utilisées pour tester les paramètres du maillage

Nous retrouvons les trois éléments constitutifs de notre dispositif absorbant, dans une disposition MIM. Pour calculer le champ EM dans notre structure, il s'agit tout d'abord de créer un maillage de ce système. Une des idées fondamentales de la MEF est que la solution approchée au problème électromagnétique à résoudre est d'autant plus proche de la solution exacte à mesure que la taille du maillage est de plus en plus fine : plus le maillage est fin, plus le nombre de sommets sur lesquels on va pouvoir baser l'estimation de la valeur du champ EM est grand, et donc meilleure sera l'estimation... Mais ceci a un coût. On a vu que la taille du système linéaire à résoudre était de dimension N , où N est le nombre de sommets du maillage. Un maillage plus fin requiert la résolution d'un système linéaire plus grand. Cela a une incidence sur la place mémoire occupée par le calcul, aussi bien que sur la durée du calcul. Il y a donc un arbitrage à effectuer entre la précision souhaitée et la quantité de ressources que l'on consent à allouer.

On choisit pour la suite des simulations une forme tétraédrique de maille. Comparée à la forme hexaédrique qui est parfois utilisée, elle est constituée de moins de sommets et est donc plus adaptable au pavage de la géométrie de la structure. C'est un avantage dans notre cas, notamment pour le pavage du résonateur cylindrique, qui possède des bords non polygonaux plus complexes à mailler.

Le maillage est effectué en deux temps : dans un premier temps, un maillage initial est réalisé à priori à partir de la configuration géométrique du système. Ce maillage est calculé par défaut sur la base de n mailles par longueur d'onde : n correspond au nombre de mailles minimum contenues dans un domaine de longueur égale à la plus petite longueur d'onde $\lambda=c/f$ de la bande de fréquence de calcul. La *Figure 27a*) montre un exemple d'un tel maillage en vue de dessus pour 4 cellules par longueur d'onde, pour la structure présentée en *Figure 26*. Elle contient 5 071 tétraèdres. A partir de cette première estimation, on réalise un maillage plus fin dont la précision est contrôlée par la convergence du résultat souhaité : on l'appelle le maillage adaptatif. Dans notre cas, le résultat sera le calcul des paramètres S du système, nous y reviendrons par la suite. Pour ce faire, une simulation est réalisée à une fréquence donnée (par défaut, la fréquence maximale de la bande de simulation). A partir de cette simulation, les paramètres S de la structure sont calculés (nous verrons comment ils sont définis dans le paragraphe II23) pour le maillage initial. Puis le maillage est affiné dans les zones où le champ EM possède des valeurs élevées ou un fort gradient, et les paramètres S sont calculés avec ce nouveau maillage. On calcule alors la variation de la valeur des paramètres S induite par le raffinement du maillage, appelée delta S parameters. Lorsque les paramètres S ont atteint un niveau de convergence suffisant (delta S parameters < seuil), le maillage est jugé satisfaisant. La *Figure 27b*) montre le maillage obtenu après l'étape de maillage adaptatif, pour un paramètre de seuil de 0,02. Le nombre de tétraèdres augmente jusqu'à 31 543. L'onde d'excitation est une onde plane TE avec \mathbf{E} dans la direction \mathbf{y} (le système de coordonnées est indiqué sur la *Figure 27b*)). On voit que le nombre de mailles a augmenté vers les bords du cylindre dans la direction du champ électrique, là où le champ est le plus concentré, comme nous aurons l'occasion de le montrer par la suite. Il semble que le maillage adaptatif soit le plus pertinent car il est réalisé non pas à priori, mais à l'issue d'un calcul qui permet d'identifier les éléments cruciaux de la structure. Ainsi, on s'aperçoit que le maillage réalisé à priori en *Figure 27a*) est approximativement symétrique de révolution au niveau du pilier, alors que celui de la *Figure 27b*) n'a plus de symétrie de révolution, et est adapté spécifiquement à la source polarisée verticalement utilisée pour la simulation, ce qui explique le maillage plus fin dans la direction verticale.

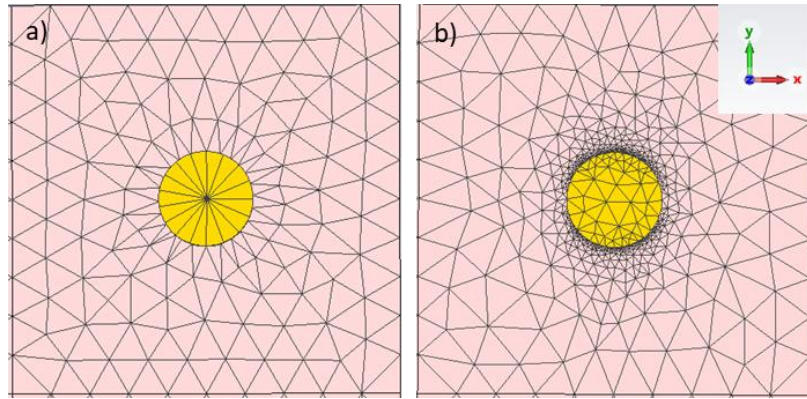


Figure 27 Représentation des cellules du maillage généré a) avant et b) après l'étape de maillage adaptatif

Construire un maillage revient donc à définir la valeur de deux paramètres : le nombre de cellules par longueur d'onde (cplo) et le seuil définissant le critère de convergence de l'étape de maillage adaptatif. Pour valider les valeurs à utiliser, on va tester ces valeurs sur un exemple. On calcule ainsi les paramètres S de la structure de la Figure 26 pour différentes valeurs du nombre de cplo, et du seuil de convergence. La Figure 28 montre la courbe de $|S_{11}|$ en fonction de la fréquence, calculée pour différentes valeurs de cplo et de valeurs de seuil de delta S parameters. Le coefficient S_{11} correspond au paramètre S du port 1 vers le port 1, il sera défini dans la suite. Pour l'instant, il nous suffit de constater si cette quantité converge en fonction des paramètres de génération du maillage.

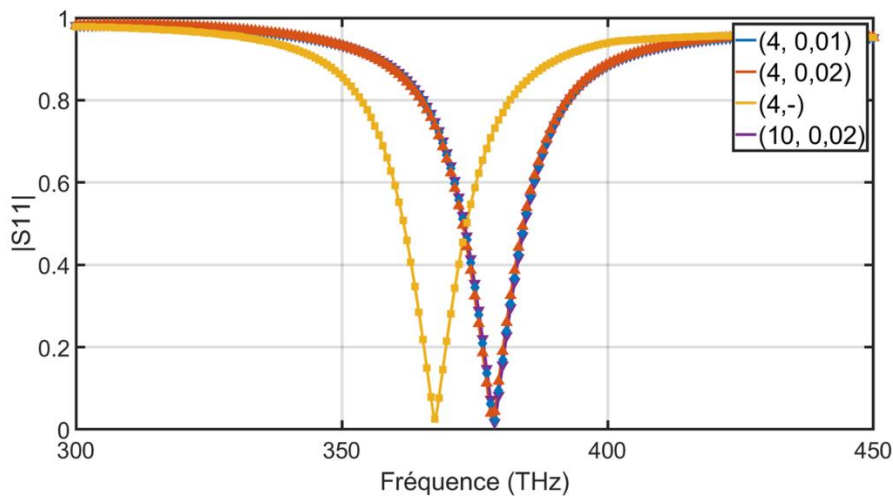


Figure 28 $|S_{11}|$ en fonction de la fréquence pour différents couples (cplo,delta S)

On constate que si l'on tente d'affiner le maillage en imposant des contraintes plus fortes sur le nombre de cplo d'une part en passant de 4 à 10 cplo (ce qui correspond à un passage du nombre de tétraèdres de 31 543 à 65 397), ou le seuil de convergence du critère du maillage adaptatif d'autre part (une diminution du seuil de 0,02 à 0,01 entraîne une augmentation de 31 543 à 38 144 tétraèdres), le résultat du calcul ne change pas de manière significative : les trois courbes correspondantes sont presque confondues. En revanche, l'étape de maillage adaptatif reste tout de même importante car sans maillage adaptatif la courbe de $|S_{11}|$ est celle représentée en jaune, qui est décalée significativement vers les basses fréquences d'environ 10 THz par rapport aux autres. Ceci montre que le calcul de $|S_{11}|$ a déjà convergé pour le

couple de valeurs (cplo, delta S parameters) = (4 ; 0,02). Cela valide la qualité des résultats obtenus par simulation pour ce choix de paramètres. Dans la suite, sauf mention contraire, on gardera ces valeurs pour générer le maillage de nos simulations.

Une dernière précaution à propos du maillage se situe au niveau du nombre de mailles qui existent dans la partie isolante de notre structure. Comme nous l'avons souligné au chapitre I, à la résonance plasmonique, les champs électrique et magnétique sont majoritairement concentrés dans cette fine couche de 20 nm. Il est donc important de mailler ce domaine avec précision. La *Figure 29a)* montre le maillage de la même structure, en vue de côté et après l'étape du maillage adaptatif, pour le jeu de paramètres (cplo, delta S parameters) = (4, 0,02).

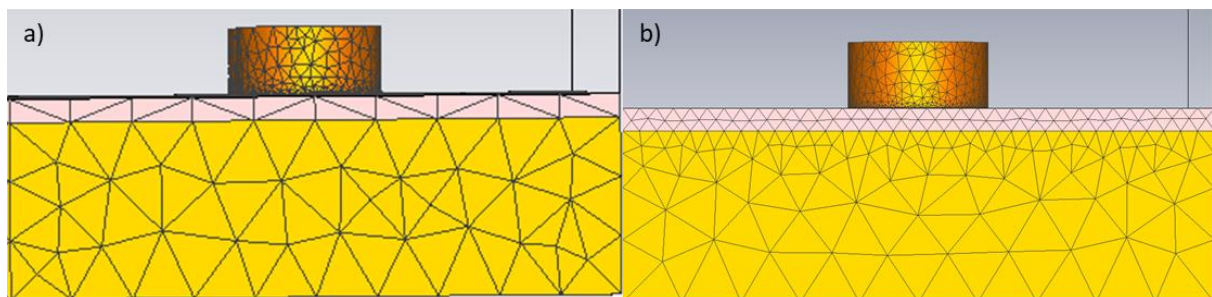


Figure 29 Maillage diélectrique a) sans condition spécifique pour la couche isolante, et b) avec une taille maximale de maille de 15 nm

Il apparaît que le maillage de la partie isolante est assez sommaire car on ne remarque dans la direction verticale z que deux mailles dans le diélectrique. Or, il existe une fonction du logiciel CST qui permet de réaliser des maillages avec des conditions spécifiques pour chaque élément défini dans la structure. Nous allons introduire des conditions de maillage plus sévères dans la partie diélectrique et comparer les courbes de $|S_{11}|$ obtenues dans les deux cas. La *Figure 29b)* ci-dessus montre le maillage de la structure en vue de côté lorsque l'on introduit une condition de taille maximale de la maille de 15 nm dans la partie isolante de SiO_2 . On voit que le nombre de mailles dans le diélectrique est plus important : désormais on dénombre quatre mailles dans la direction verticale du SiO_2 . Le nombre total de mailles dans la structure est porté à 82 355. La *Figure 30* montre la courbe de $|S_{11}|$ dans les deux cas.

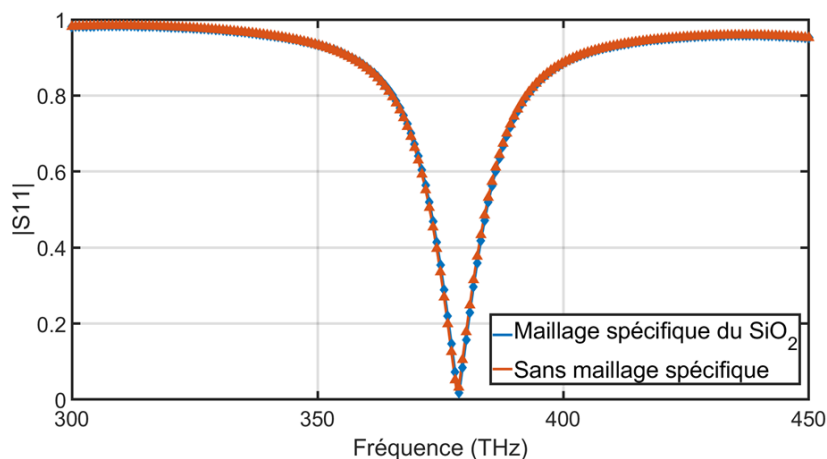


Figure 30 $|S_{11}|$ en fonction de la fréquence en fonction du maillage dans le diélectrique

Nous pouvons constater qu'une augmentation du nombre de mailles dans le diélectrique exerce une influence négligeable dans le calcul du paramètre $|S_{11}|$ de la structure : il ne sera pas nécessaire dans la suite de mailler le SiO₂ de manière spécifique.

II23 Notion de super cellule

Nous avons désormais défini les paramètres de génération du maillage. Pour définir complètement le problème à résoudre par la MEF, il reste à spécifier deux choses : tout d'abord, les conditions aux limites (CL) de notre domaine, puis la source d'excitation. Ces deux étapes ne doivent pas être négligées dans la mesure où l'enjeu consiste à modéliser le problème de manière adéquate pour s'assurer d'une part que la méthode numérique va calculer des grandeurs ayant une réelle signification physique, et que les résultats obtenus soient, d'autre part, comparables aux grandeurs mesurées par le dispositif expérimental. Il s'agit donc de faire un choix de ces paramètres de manière à approcher au maximum des conditions expérimentales.

Commençons par les conditions aux limites. Le domaine de simulation est une boîte parallélépipédique entourant la structure, comme sur la *Figure 31* où elle est représentée par les fines lignes noires.

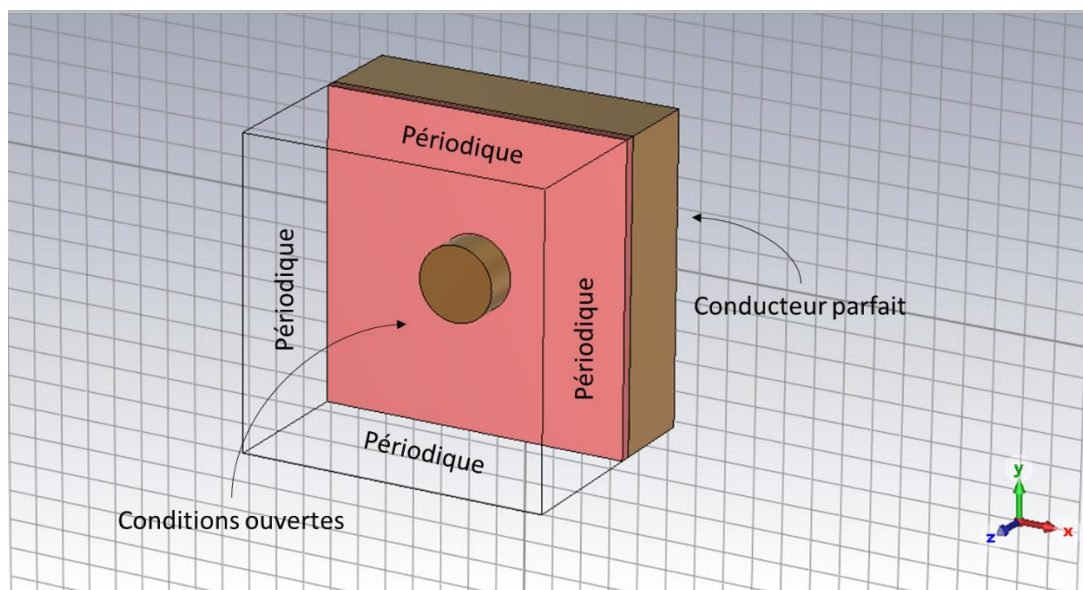


Figure 31 Schéma des conditions aux limites employées dans les simulations

Elle est associée à des coordonnées cartésiennes dont les axes sont définis sur la *Figure 31*. Il y a donc six conditions aux limites à définir correspondant aux six faces de ce domaine. Les CL de ces six faces sont détaillées sur la *Figure 31* : la face inférieure est un conducteur parfait, ou Perfect Electric Conductor (PEC) en anglais. Il s'agit d'une surface représentant l'action d'un matériau fictif infiniment conducteur, de permittivité « $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon'' = \epsilon' - i\infty, \forall f$ », et d'épaisseur nulle, qui réfléchit donc parfaitement le champ électrique à toutes les fréquences du spectre EM. C'est une CL qui permet de simplifier les calculs : le champ électrique qui sort du domaine de simulation est immédiatement connu (sa valeur est nulle) et n'a donc pas besoin d'être calculé par résolution numérique sur cette face du

domaine. En contrepartie, le rayonnement arrivant sur cette surface sera réfléchi vers la structure, ce qui peut paraître étrange : physiquement, il n'y a aucune raison pour que le rayonnement soit réfléchi à cet endroit. Cependant, ce choix est justifié par le fait qu'en réalité, on sait sans faire de simulation que le champ EM à cet endroit de la structure est très proche de 0 et qu'on peut le négliger absolument. En effet, la source étant placée au-dessus de la structure, pour que du rayonnement arrive en direction de la surface inférieure, il faut qu'il traverse la couche de 100 nm d'or. Or, nous allons travailler avec des excitations de fréquences situées dans le proche infrarouge (avec une fréquence autour de 375 THz). A ces fréquences, l'épaisseur de peau dans l'or est d'environ 30 nm [48], ce qui signifie que le champ EM est quasiment nul sur la surface inférieure, donc le champ réfléchi par la surface PEC peut être négligé et n'aura aucune incidence sur les résultats.

La face supérieure est quant à elle constituée d'une surface en conditions ouvertes, ou Perfectly Matched Layer (PML) en anglais [22]. Cette condition aux limites représente au contraire l'influence d'un matériau fictif absorbant en principe l'intégralité du rayonnement incident sans générer aucune réflexion. En pratique, l'efficacité de l'absorbant dépend de l'angle d'incidence du rayonnement sur la surface PML : elle absorbe d'autant mieux le rayonnement que l'angle d'incidence est normal au plan du PML. Cette condition aux limites est employée pour modéliser le fait que nous souhaitons étudier uniquement la distribution de champ EM générée par l'interaction entre la source d'excitation et la structure : tout autre canal EM qui pourrait réfléchir du champ EM depuis le demi-espace supérieur en direction de la structure est considéré comme parasite et doit être éliminé dans le dispositif expérimental et autant que possible dans les simulations numériques.

Enfin, les conditions sur les bords verticaux du domaine sont des conditions périodiques appelées « unit cell ». Ce sont les conditions aux bords qui doivent être employées lorsque l'on doit simuler le comportement d'une structure périodique dans l'espace. Une structure périodique est infinie ; cela ne peut être une condition strictement respectée par un système physique, néanmoins il s'agit d'une bonne modélisation pour un système constitué de répétitions périodiques d'un motif dans l'espace dont on peut négliger les effets de bords liés aux dimensions forcément finies du système. Cette approximation est valide lorsque la longueur d'onde d'excitation de la structure est négligeable devant les dimensions du domaine. Ces conditions seront réunies dans nos échantillons expérimentaux, où nous serons capables de fabriquer des distributions contenant des dizaines de milliers de cellules élémentaires comme celle que nous étudions pour l'instant. Dans ce cas, on peut restreindre l'étude du réseau infini de motifs à l'étude d'un motif particulier appelé maille élémentaire et représentée en *Figure 31*, pourvu que l'on choisisse des conditions aux limites qui traduisent effectivement l'influence du reste du réseau sur la cellule élémentaire. La maille élémentaire est choisie comme le plus petit domaine qui permet d'engendrer la structure complète par translation, et la condition aux limites périodique se traduit ainsi simplement par l'égalité du champ EM aux bords du domaine à une constante de phase près. Par le théorème de Floquet, on sait en outre que l'on peut décomposer le champ EM inconnu dans le domaine de simulation sur une base de modes transverses électriques (TE) et transverses magnétiques (TM)

appelés modes de Floquet, indexés par deux nombres m et n , de vecteur d'onde \mathbf{k}_{mn} . Un mode TE est un mode dont la composante x du champ \mathbf{E} est nul, et un mode TM est un mode dont le champ \mathbf{E} a une composante y nulle. Les composantes de \mathbf{k}_{mn} pour le mode d'ordre m,n s'expriment [87],

$$k_{xmn} = k_0 \sin(\theta) \cos(\varphi) + \frac{2m\pi}{p} \quad (24)$$

$$k_{ymn} = k_0 \sin(\theta) \sin(\varphi) + \frac{2n\pi}{p} \quad (25)$$

et

$$k_{zmn} = \sqrt{k_0^2 - k_{xmn}^2 - k_{ymn}^2} \quad (26)$$

[87], où $k_0=2\pi/\lambda$ est le vecteur d'onde dans le vide, λ est la longueur d'onde incidente, p la période de répétition du motif, et θ et φ sont les angles d'élévation et d'azimut de l'onde incidente dans la base sphérique. Comme nous emploierons une excitation en incidence normale, alors dans notre cas, $k_{xmn} = \frac{2m\pi}{p}$ et $k_{ymn} = \frac{2n\pi}{p}$. La direction de \mathbf{k}_{mn} dans la base sphérique vaut [87]

$$\theta_{mn} = \cos^{-1}\left(\frac{k_z}{k_0}\right) \quad (27)$$

et

$$\varphi_{mn} = \tan^{-1}\left(\frac{k_x}{k_y}\right) \quad (28)$$

Ainsi, chaque mode de Floquet est associé à une propagation dans une direction spécifique ; le mode fondamental (0,0) se propage dans la direction spéculaire normale car $k_{x00} = k_{y00} = 0$. Les modes supérieurs se propagent dans les directions obliques. De plus, chaque mode de Floquet est propagatif en réflexion à la condition que $k_{xmn}^2 + k_{ymn}^2 < k_0^2$ (ce qui implique k_{zmn} réel). Les modes fondamentaux sont toujours propagatifs car $k_{x00} = k_{y00} = 0 < k_0^2$. Les modes supérieurs, quant à eux, deviennent propagatifs à mesure que la période p augmente. Nous reviendrons sur cet aspect dans la suite. Dans la suite, nous décomposerons le champ EM recherché seulement sur les modes propagatifs de cette base de Floquet, générés par un port de Floquet. L'intérêt numérique du théorème de Floquet est considérable : il permet de calculer le champ EM dans une cellule élémentaire du réseau infini, tout en prenant en compte l'influence du reste du réseau sur le champ contenu dans la cellule élémentaire, sans avoir à mener la résolution en dehors de la cellule élémentaire. Pour modéliser le comportement d'un réseau périodique, nous nous limiterons à la simulation de cette cellule élémentaire.

Il est à noter que nous conserverons sauf exception, ces conditions aux limites pour toutes les simulations. Or, le but de l'étude qui sera présentée par la suite consiste à étudier l'influence de l'introduction de désordre dans la position des piliers cylindriques résonants. Utiliser des conditions aux

limites périodiques pour modéliser des distributions désordonnées peut sembler étonnant. Cependant, les ressources disponibles pour le calcul étant limitées, il est impossible de simuler des distributions de plus de quelques μm^2 de surface, contenant au maximum une centaine de piliers. Or, les distributions que l'on souhaiterait caractériser numériquement, sont quant à elles composées de cellules de plusieurs milliers de μm^2 (typiquement $50 \times 50 \mu\text{m}^2$), contenant des milliers de piliers. Or, les couplages en champ proche entre particules plasmoniques peuvent influencer fortement l'intensité de la résonance individuelle des autres particules, lorsque la distance entre deux NP est faible. Pour des ensembles de deux particules plasmoniques métalliques dont on varie la distance, ce couplage en champ proche peut influencer la fréquence de résonance individuelle pour des distances inter particules inférieures à $2,5d$, où d est la taille des nanoparticules [88]. Dans notre cas, cela correspond à des distances bord à bord de l'ordre de 300 nm, soit une distance centre à centre de 426 nm. Dans des ensembles de particules, le couplage successif en champ proche des résonances plasmoniques peut conduire de proche en proche à une propagation par couplage de l'excitation plasmonique dans des chaînes de NP sur des distances de l'ordre de 500 nm pour des nano-barres de dimensions $90 \times 30 \times 30 \text{ nm}^3$ [89]. Dans tous les cas, cela suggère qu'il faut prendre en compte le couplage qui peut se produire en champ proche entre les MA de nos MS si les distances entre MA sont inférieures à 500 nm, ce qui sera le cas en général dans nos structures. Ainsi, si l'on choisissait des conditions aux bords de type PML dans nos simulations, les piliers placés sur le bord du domaine ne seraient pas couplés avec les autres piliers qui devraient exister dans le reste de la distribution. Or, pour des distributions de quelques dizaines de piliers, les NP placées sur le bord du domaine représentent une part non négligeable du total des piliers. Afin de pallier ce problème, nous avons fait le choix d'étendre artificiellement le domaine de simulation à l'infini par le recours à des conditions périodiques sur les bords des simulations désordonnées, au prix de l'ajout d'une périodicité « parasite ». Cette répétition permet de simuler un réseau de grande taille comme ceux que nous fabriquerons. Nous appellerons les domaines désordonnés avec conditions aux bords périodiques, des « super cellules ». Nous ferons l'hypothèse que la périodicité introduite par la répétition de cette super cellule a un effet négligeable sur le comportement de la structure, si la super cellule est suffisamment grande. Cette condition est réalisée lorsqu'un grand nombre de modes de Floquet sont propagatifs dans le domaine de simulation : en effet, l'absence de périodicité correspond au cas limite où l'ensemble des modes de Floquet sont propagatifs. Or, compte tenu de ce que nous avons expliqué plus haut, plus la taille du domaine de simulation est grande, plus le nombre de modes de Floquet propagatifs est grand. Ainsi, augmenter la période de répétition permet de réduire l'effet de celle-ci sur le comportement EM de la structure, comme on peut s'y attendre intuitivement. Les super-cellules que nous simulerons dans le cadre de cette thèse sont de $3 \times 3 \mu\text{m}^2$. A la longueur d'onde λ de travail minimale ($\lambda \sim 0,6 \mu\text{m}$), ces super-cellules comportent 178 modes de Floquet propagatifs, ce qui semble suffisant.

Il reste à définir l'excitation incidente. Ici, nous faisons le choix d'une excitation sous forme d'onde plane en polarisation TE (le champ \mathbf{E} est parallèle à la direction \mathbf{y}) ou TM (le champ \mathbf{E} est parallèle à la direction \mathbf{x}), en incidence normale en direction de la MS. Il s'agit en fait du mode TE(0,0) et TM(0,0)

de la base de Floquet. Cette onde plane modélise correctement le profil d'une onde générée en champ lointain, et est conforme à l'excitation par laser que nous allons employer pour tester expérimentalement le comportement de cette structure par la suite.

Enfin, les matériaux sont modélisés par leur permittivité et perméabilité : le modèle de l'or est tiré de [47] et celui du SiO₂ de [90].

Muni de ces contraintes, le solveur fréquentiel de CST utilise ensuite la MEF pour calculer le champ EM dans le domaine de simulation pour une valeur de fréquence f particulière de l'excitation. Le port de Floquet d'entrée/sortie permet de définir les paramètres S du système. Ces paramètres S sont calculés fréquence par fréquence dans la bande spécifiée, et interpolés sur le reste du domaine de fréquence de simulation jusqu'à satisfaire un critère de convergence défini par l'utilisateur : ici il sera de 0,01 par défaut.

II3 Introduction du désordre dans la MS

Dans ce paragraphe, nous allons comparer le comportement électromagnétique de notre MS en considérant des distributions périodiques et désordonnées des résonateurs. Nous allons employer deux stratégies complémentaires de génération du désordre : d'abord, les positions des piliers résonants seront choisies indépendamment les unes des autres, ce qui permet de les distribuer de manière complètement aléatoire. D'autre part, nous perturberons les positions initiales occupées par les résonateurs dans un réseau périodique, par une quantité aléatoire d'amplitude contrôlable. Dans les deux cas, nous imposerons des contraintes de manière à éviter le recouvrement des piliers. Cela permet de conserver la géométrie des résonateurs dans la distribution obtenue, et ainsi de préserver la réponse résonante individuelle des piliers, qui est dépendante de leur géométrie. En revanche, il est à noter que les piliers, après introduction du désordre, sont autorisés à se rapprocher à des distances arbitrairement petites, jusqu'au contact. La situation de contact est cependant un cas limite jamais totalement atteint. Il n'existe ainsi pas de courants de conduction entre piliers voisins, ce qui permet de faire l'hypothèse que chaque pilier se comporte comme un résonateur individuel couplé.

II31 Distribution binomiale sans recouvrement

Pour générer le premier type de distribution, on fixe la longueur c d'un domaine carré du plan, et le nombre de piliers n à placer sur ce domaine. Cela définit une densité de piliers ρ , définie comme la surface totale occupée par les piliers, divisée par la surface du domaine, qui s'exprime par l'expression suivante : $\rho = n\pi r^2 / c^2$, car les piliers ne se recouvrent pas entre eux et chaque pilier couvre une aire de πr^2 , avec r le rayon des piliers. Une fois ces deux paramètres choisis, on place chaque pilier les uns après les autres sur la surface en tirant la position du centre de manière aléatoire. La coordonnée x du centre de chaque pilier est une variable aléatoire (VA) de loi uniforme dans $[-c/2 ; +c/2]$, et ainsi de même pour la coordonnée y . Si un pilier a été placé à une distance d'un autre pilier inférieure au

diamètre, et que les deux piliers seraient amenés à se chevaucher, on retire le pilier et on réévalue aléatoirement la position selon le même principe, jusqu'à trouver une position valide. La *Figure 32* montre deux distributions particulières de 100 piliers, obtenues par cette procédure, de densité $\rho \sim 5\%$ pour la *Figure 32a)*, et $\rho \sim 50\%$ pour la *Figure 32b)*.

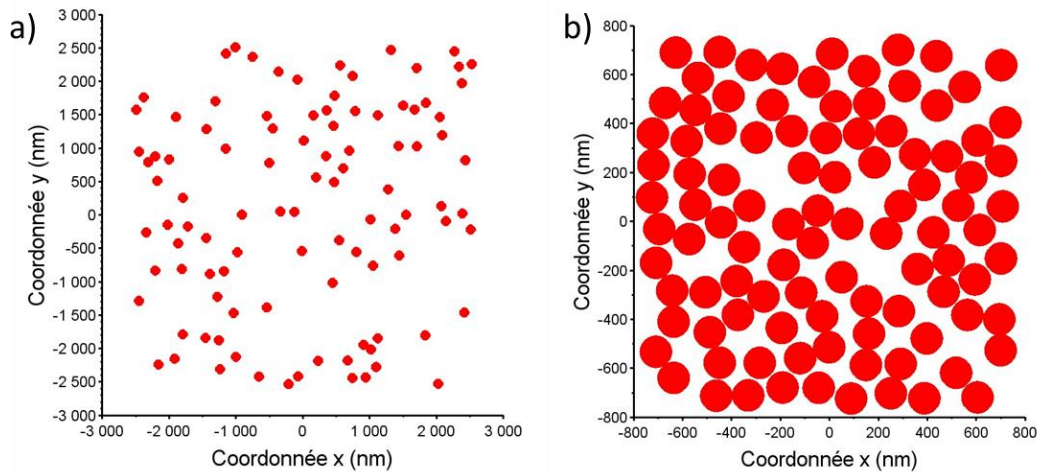


Figure 32 Distributions de 100 piliers de densités a) 5% et b) 50% générées par essais/erreurs successifs selon une loi uniforme. Le diamètre des piliers est fixé à $d=126$ nm pour les deux distributions

Chaque pilier est représenté par un cercle rouge. Le diamètre des piliers est fixé à $d=126$ nm dans les deux distributions. Nous justifierons plus tard pourquoi nous nous intéresserons à cette taille de piliers particulière. Il s'agit d'une distribution sans recouvrement dont le degré de liberté pour le placement des piliers est le plus grand possible : la seule contrainte qu'impose le placement d'un pilier sur la surface vis-à-vis du positionnement du reste des piliers, est que l'espace qu'il occupe devient inaccessible pour les piliers suivants. Cependant, si pour des distributions peu denses (voir *Figure 32a)*), cette contrainte ne semble pas être très forte, en revanche, lorsque la densité augmente, la surface des positions admissibles pour une particule se réduit fortement au cours du processus de génération des positions au fur et à mesure que l'on a placé les premiers piliers. Bien souvent, l'ajout d'un pilier supplémentaire interdit le positionnement d'un nouveau pilier au-delà du cercle occupé par le pilier en question, si l'espace entre le pilier et son voisin est inférieur au diamètre. Sur la *Figure 32b)*, où la densité des piliers est 50% environ, les positions admissibles sont très réduites et il est difficile d'imaginer positionner beaucoup plus de nouveaux piliers, alors que l'aire disponible permettrait pourtant d'accueillir encore autant de piliers que ceux qui sont déjà présents. Ainsi, si la position des premiers piliers est absolument libre, ce n'est plus du tout le cas pour les piliers suivants. En cela, on ne peut générer des distributions bien plus denses que 50% avec cette méthode. Ainsi, on peut s'attendre à ce que dans la limite des faibles densités de piliers, la loi obtenue soit très proche d'une loi binomiale (voir paragraphe I231), mais que ce ne soit plus tout à fait vrai à mesure que la densité augmente. En effet, même si la position du centre de chaque pilier est le résultat de la réalisation d'une VA de loi uniforme sur $[-c/2 ; +c/2]$, et que l'on pourrait alors considérer que le processus est complètement aléatoire, en réalité, la condition de non-recouvrement implique le rejet de certaines réalisations, ce qui peut changer les propriétés des

distributions obtenues. Nous allons examiner dans la suite l'influence de la condition de non-recouvrement sur les propriétés des distributions, notamment par l'examen du facteur de structure.

II32 Génération de distributions hyperuniformes

Dans un deuxième temps, nous allons nous intéresser à un deuxième type de distribution aléatoire. On se donne tout d'abord un domaine carré de côté c . A l'intérieur de ce domaine, les piliers sont initialement placés selon un réseau carré ordonné, de période p . Ensuite, les distributions sont générées par perturbation du réseau initial. Les coordonnées x et y du centre de chaque pilier sont déplacées aléatoirement et indépendamment, par des quantités égales à la réalisation de deux variables aléatoires mutuellement indépendantes mais de même loi. Les variables aléatoires correspondant à chaque pilier sont de plus indépendantes entre elles, et identiquement distribuées. Nous introduisons également la condition supplémentaire de non-recouvrement, comme pour les distributions binomiales : le centre de chaque pilier sur la surface doit être éloigné du centre des autres piliers d'au moins la valeur du diamètre d . La loi visée de déplacement pour chaque coordonnée x et y par rapport à la position initiale périodique, est une loi normale centrée de variance σ^2 que nous noterons $N(0, \sigma^2)$, conditionnée par la condition de non recouvrement. Si le diamètre des piliers est nul, ou que la densité de piliers est très faible, la loi obtenue sera $N(0, \sigma^2)$. Sinon, la condition de non recouvrement va modifier substantiellement la loi. Nous le quantifierons dans la suite. Quoi qu'il en soit, on peut dire dans tous les cas que la moyenne de chaque variable aléatoire est nulle, donc le déplacement est centré sur la position initiale. Ensuite, l'écart type σ permet de contrôler l'amplitude des déplacements. Une valeur σ égale à 0 ne perturbe pas le réseau, mais plus on augmente σ , plus les déplacements seront importants, donc plus on introduit de désordre. En effet, la densité de probabilité correspondante est de plus en plus « étalée » de part et d'autre de la moyenne 0 à mesure que σ augmente.

Pour générer les déplacements souhaités, on utilise une procédure de type « MCMC » (pour « Markov Chain Monte Carlo »). Il s'agit d'une méthode consistant à simuler la loi souhaitée de manière itérative à partir d'une autre loi que l'on peut facilement simuler. Sans contrainte particulière, simuler une loi $N(0, \sigma^2)$ est facile ; cependant, la nécessité de travailler avec des piliers de taille non nulle, et non un ensemble de points, rend la tâche plus difficile : en effet, la condition de non recouvrement que l'on s'impose rend impossible le déplacement de chaque pilier directement selon la loi cible. Si l'on s'y prenait de cette manière, on serait contraint de rejeter les déplacements qui entraînent des recouvrements, et certains piliers ne seraient pas déplacés du tout de leur position initiale. On voit donc qu'il est nécessaire de déplacer les piliers de manière incrémentale. Dans ce cadre, chaque rejet de position à la suite d'un conflit a un effet moins important sur la statistique, car le déplacement correspondant ne constitue qu'une fraction du déplacement total. C'est l'objet des méthodes par chaînes de Markov, dont nous allons utiliser l'implémentation de Metropolis/Hastings [91] qui est une méthode MCMC particulière. Une chaîne de Markov est un processus aléatoire itératif où l'état de la variable aléatoire (ici, la position aléatoire dans le plan), ne dépend que de l'état de la variable à l'itération précédente du

processus. Sous certaines conditions, qui sont remplies dans l'algorithme Metropolis/Hastings, ce processus converge vers un état stationnaire d'équilibre au bout d'un certain nombre d'itérations. Dans cet algorithme, on calcule un déplacement selon une certaine statistique, puis on accepte ou non cette proposition de déplacement suivant les contraintes que l'on s'est imposées. Ici, nous acceptons le déplacement à condition que celui-ci n'induit pas de conflit de recouvrements, ou que le pilier ne sorte pas du domaine carré de côté c .

Le principe de l'algorithme repose donc sur l'existence d'une loi pour calculer les déplacements intermédiaires, qui satisfasse les conditions de convergence du processus de Markov vers la bonne loi cible. Ici, nous adoptons une loi normale centrée de variance $v(k)$ variable en fonction de l'itération k : les états successifs du processus de Markov suivent $N(0, v(k))$ et convergent vers $N(0, \sigma^2)$. Plus précisément, l'algorithme fonctionne comme suit : on part des positions initiales d'un réseau carré de période p , et on tire aléatoirement un pilier selon la loi uniforme dans l'intervalle $[[1; n]]$, où n est le nombre de piliers. C'est pour cela que cette méthode est qualifiée de méthode de Monte Carlo. On effectue ensuite une itération de l'algorithme sur la position du pilier sélectionné : on calcule la proposition de déplacement puis on l'accepte ou non. Pour vérifier les conflits de position, on n'effectue cette vérification que sur un sous-ensemble de la distribution totale, en fonction du déplacement du pilier depuis sa position de départ, pour limiter le temps de calcul. On répète l'opération jusqu'à ce que la loi de déplacement de chaque pilier converge vers la loi cible. Cette méthode, programmée en langage Scilab par David Dereudre du laboratoire Painlevé de l'Université de Lille, est fournie en Annexe 1.

Un point important de la méthode consiste à choisir convenablement le nombre d'itérations pour permettre d'atteindre la loi désirée. Pour ce faire, la méthode consiste généralement à observer le comportement d'une quantité représentative de la loi cible en fonction du nombre d'itérations. Lorsque l'on augmente le nombre d'itérations de l'algorithme, la loi de déplacement suit tout d'abord une phase transitoire appelée « warm up » pendant laquelle le processus de Markov n'a pas encore convergé, puis une phase stationnaire où la loi est atteinte mais les quantités continuent à fluctuer selon la loi du processus aléatoire. Le déplacement des piliers ne converge pas en fonction du nombre d'itérations, c'est seulement la loi du déplacement qui converge. Pour choisir un nombre d'itérations satisfaisant, qui garantisse la convergence de la loi, il faut donc s'intéresser à des quantités statistiques représentatives de la loi. Usuellement, on choisit par exemple de représenter le nombre de rejets des déplacements proposés, sur une certaine tranche d'itérations, en fonction du nombre d'itérations. Cette quantité suit une période transitoire, puis stationnaire. On considère que le nombre d'itérations est suffisant si la période transitoire correspond à moins d' $1/3$ du nombre total d'itérations. La *Figure 33* montre la moyenne mobile sur 50000 itérations de l'algorithme du nombre de rejets de déplacements en fonction du nombre d'itérations, pour une distribution de 100×100 piliers de diamètre $d=126$ nm, et de période $p=520$ nm, et un écart type $\sigma/p=0,5$:

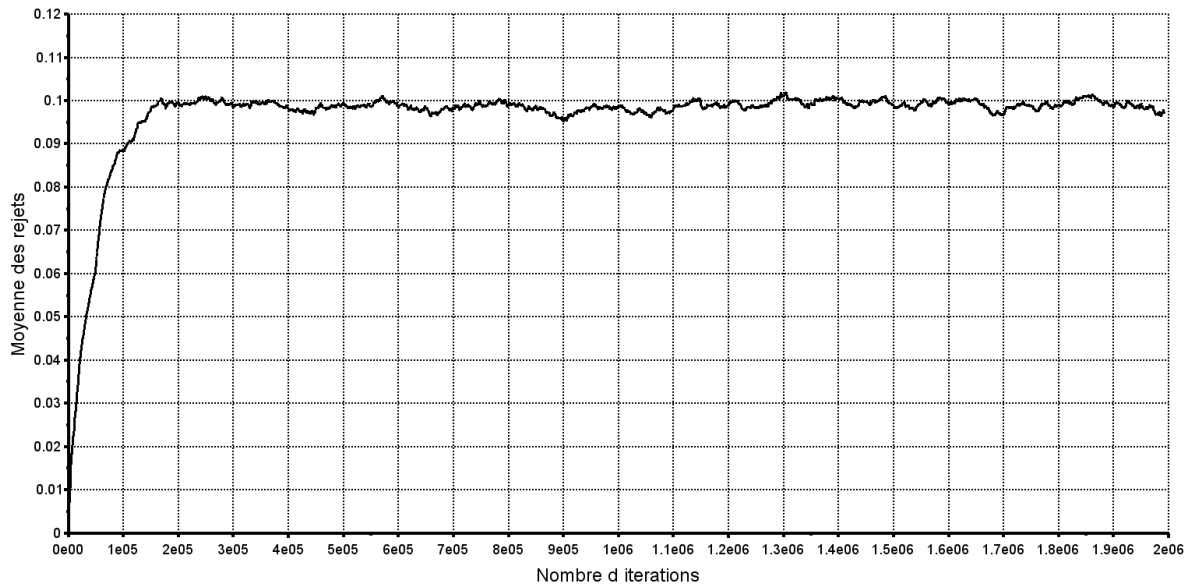


Figure 33 Nombre de rejets en fonction du nombre d'itérations moyenné sur une fenêtre glissante de 50000 itérations pour $p=520$ nm, $d=126$ nm, $\sigma/p=0,5$ dans une distribution de $N=100 \times 100$ piliers et un nombre d'itérations total de $200 * N$

On voit que le nombre moyen de rejets est bien constitué d'une phase transitoire suivie d'une phase stationnaire. Au début, les déplacements des piliers n'induisent pas ou peu de recouvrement tant que les piliers n'ont pas été suffisamment déplacés de leur position initiale. Ensuite, les piliers sont suffisamment proches pour que chaque proposition de déplacement d'un pilier particulier le mette potentiellement en conflit avec son ou ses voisins. Le nombre de rejets dans la phase stationnaire est relativement constant autour de 1 rejet tous les 10 déplacements, même si cette quantité reste fluctuante et de nature aléatoire : même le nombre de rejets moyen fluctue. Graphiquement, on peut estimer que l'on a atteint la phase stationnaire au bout d'environ $2 * 10^5$ itérations, soit $20 * N$, où N est le nombre de piliers de la distribution. Le nombre d'itérations minimum correspond à $3 * 20 * N$ pour que la phase de warm up constitue moins d'1/3 du temps total. Dans la suite, pour être sûr que le processus de Markov a bien convergé, on se donnera une marge par rapport à cette limite et on fixera donc le nombre d'itérations à $100 * N$.

La loi cible est dépendante de la densité. On sait que la loi cible est une loi $N(0, \sigma^2)$, sous condition de non recouvrement. Si on déplace un ensemble de points, c'est-à-dire des piliers de diamètre nul, ou que la densité des piliers est faible, alors la loi de déplacement obtenue après convergence du processus de Markov sera exactement la loi $N(0, \sigma^2)$. La Figure 34a) représente l'histogramme des déplacements horizontaux depuis la position de départ pour l'ensemble des piliers, obtenus après $100 * N$ itérations du programme pour une distribution de $N=100 \times 100$ piliers de diamètre $d=0$ nm (densité 0%) et une période $p=520$ nm, et le paramètre $\sigma/p=0,3$, ainsi que la densité de probabilité de la loi normale $N(0, \sigma^2)$ (courbe bleue), tracée sur le domaine $[-5 \sigma/p ; +5 \sigma/p]$. La Figure 34b) montre la même chose pour $p=520$ nm et $\sigma/p=0,3$, mais cette fois $d \neq 0=126$ nm (densité ~5%) :

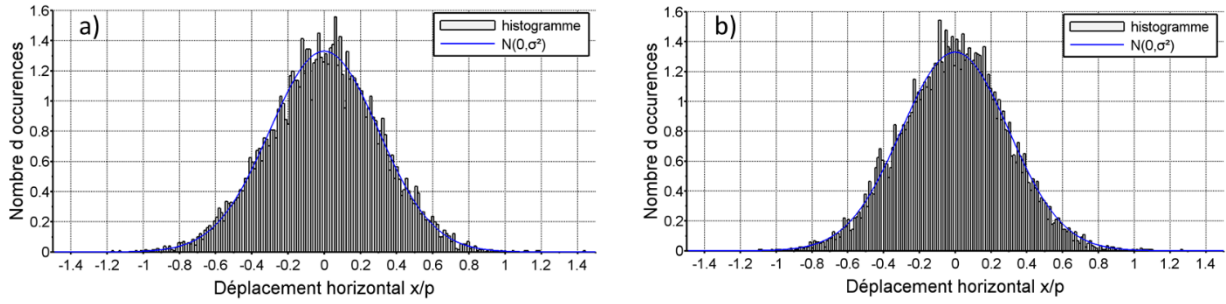


Figure 34 Histogramme des déplacements horizontaux de deux distributions de $N=10^4$ piliers, après $100*N$ itérations du processus MCMC de période initiale $p=520$ nm et de désordre $\sigma/p=0,3$ pour a) un diamètre nul des piliers et b) un diamètre de 126 nm, ainsi que la densité de probabilité de la loi $N(0,0,3^2)$

On voit dans les deux cas que l'histogramme est très proche de la densité de probabilité de la loi cible $N(0, \sigma^2)$ et que la condition de non recouvrement n'altère pas la loi cible dans le cas d'une densité de 5%. On calcule la moyenne m_{emp} et l'écart type σ_{emp}/p empiriques du déplacement horizontal, dont les estimateurs sont définis par les expressions :

$$m_{emp} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i - x_{i0} \quad (29)$$

et :

$$\sigma_{emp}/p = \frac{1}{p} \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (x_i - x_{i0} - m_{emp})^2} \quad (30)$$

où N est le nombre total de piliers dans la distribution, et x_i est la position horizontale du pilier i sur la surface, x_{i0} sa position initiale, donc $x_i - x_{i0}$ son déplacement. Il est connu que cet estimateur de l'écart type est biaisé à cause de la non linéarité de la fonction racine carrée, mais le nombre N de piliers utilisé pour réaliser l'estimation est suffisamment grand ($N=10^4$) pour garantir une estimation fiable.

Ces quantités valent dans les cas $d=0$ et $d \neq 0$ respectivement : $m_{emp}=8,081*10^{-4}$ nm et $\sigma_{emp}/p=0,2999$ et $m_{emp}=-2,006*10^{-3}$ nm et $\sigma_{emp}/p=0,2936$, qui sont des quantités proches du couple $(m, \sigma) = (0 ; 0,3)$ de la loi cible.

En revanche, si l'on travaille avec des particules de diamètre non nul, et que leur densité devient non négligeable, cela a des effets visibles sur la loi finale, car alors la condition de non recouvrement va jouer un rôle dans les déplacements. Dans ce cas, la loi obtenue n'est plus exactement $N(0, \sigma^2)$. Connaître la loi de déplacement reste encore un problème ouvert à même de motiver des recherches dans le domaine de la géométrie stochastique. La moyenne m_{emp} et l'écart type σ_{emp} empiriques obtenus par simulation d'une distribution de $N=100 \times 100$ piliers de diamètre $d=126$ nm, avec $p=158$ nm (densité $\sim 50\%$), pour un paramètre $\sigma/p=0,3$ sont $(m_{emp} ; \sigma_{emp}/p) = (-1,7458*10^{-3} \text{ nm} ; 0,2099)$. On constate qu'il y a une différence significative entre l'écart type de la loi cible et l'écart type empirique obtenu : on passe d'environ 0,30 à environ 0,21. Pour autant l'algorithme a bien convergé. La moyenne empirique est quant à elle toujours autour de 0 comme pour la loi cible. Dans la suite, on précisera les

valeurs de σ et σ_{emp} pour les distributions denses de piliers de taille non nulles. La *Figure 35* montre l'histogramme des déplacements horizontaux pour cette simulation, ainsi que les densités de probabilités d'une loi $N(0,(\sigma/p)^2)$ et $N(0,(\sigma_{emp}/p)^2)$.

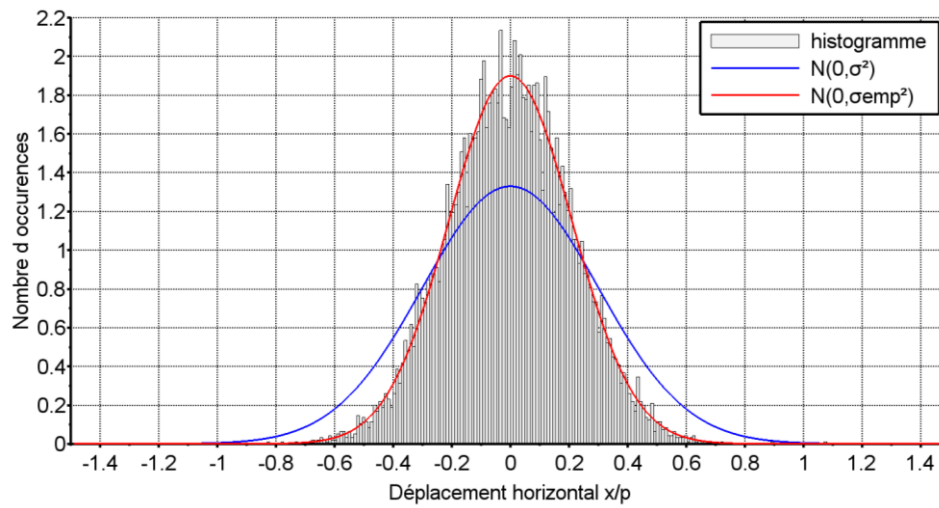


Figure 35 Histogramme des déplacements horizontaux d'une distribution de $N=10^4$ piliers, après $100*N$ itérations du processus MCMC ainsi que la densité de probabilité de la loi $N(0 ; 0,3^2)$ et de la loi $N(0 ; 0,21^2)$

L'histogramme des déplacements imposés aux piliers ne se superpose plus vraiment à la densité cible en bleu. Il semble effectivement plus proche de la densité d'une loi $N(0, (\sigma_{emp}/p)^2)$ représentée en rouge sur la figure. Intuitivement, l'histogramme obtenu de répartition des déplacements horizontaux est logique, car la contrainte imposée par le non recouvrement restreint les déplacements des piliers, c'est pour cela que l'écart type empirique est plus faible que l'écart type de la loi cible. Il faut noter que l'on a comparé dans ce graphique l'histogramme obtenu, avec les densités de lois normales, selon l'hypothèse implicite que le processus de Markov converge vers une loi « voisine » d'une loi normale, qu'on pourrait caractériser par une moyenne et une variance empiriques, mais il ne s'agit là que d'une approximation.

L'intérêt de travailler avec ce type de distribution est double : d'une part, les perturbations itératives des positions des piliers permettent de traiter identiquement tous les piliers, contrairement à la méthode précédente, dans laquelle le positionnement des premiers piliers conditionne les positions accessibles aux piliers suivants. Ici, tous les piliers sont déjà initialement positionnés, et sont perturbés dans un ordre aléatoire où la probabilité de sélectionner un pilier suit une loi uniforme dans $[1, n]$, où n est le nombre de piliers. Il n'y a pas de dissymétrie dans le traitement de la position de chaque pilier. Cependant, il est à noter que comme précédemment, la densité de piliers joue toujours un rôle dans les déplacements, puisque la condition de non recouvrement s'exerce également et entraîne une augmentation des conflits de position à chaque itération, en particulier lorsque la densité de piliers augmente. Un autre avantage de la méthode MCMC par rapport à la méthode de placement précédente est que les piliers sont déjà positionnés sur la surface au début de l'algorithme, donc quelle que soit la densité initiale de piliers, l'algorithme pourra calculer la distribution finale de position des piliers. A l'inverse, la méthode décrite

au paragraphe II31 consiste à positionner les piliers les uns après les autres, ce qui peut conduire dans certains cas à des situations de blocage notamment lorsque les densités sont grandes, où aucune position n'est accessible. Il faut alors enlever une partie des piliers déjà placés, ou recommencer le tirage depuis le début, ce qui augmente substantiellement le temps de calcul. Au contraire, avec la méthode de Metropolis Hastings MCMC, le temps de calcul de la méthode ne dépend jamais de la densité des piliers, mais simplement du nombre de piliers. Ainsi, avec le processus MCMC, on peut générer des distributions de densité arbitrairement grande à condition que la distribution périodique initiale existe. On utilise tout de même les distributions générées par la première méthode car celles-ci correspondent ainsi au cas limite où des distributions MCMC sont générées pour une valeur de σ infinie, et constituent ainsi une référence pour la méthode MCMC dans le cas des grands désordres. Ainsi, dans la suite, les distributions binomiales seront associées par commodité au paramètre $\sigma/p=\infty$, même si elles ne sont pas générées par perturbation d'un réseau. D'autre part et plus essentiellement, on peut désormais contrôler la quantité introduite de désordre par la valeur de σ . L'intérêt par la suite sera de pouvoir relier les propriétés d'absorption de la MS aux paramètres de génération de la distribution, c'est-à-dire de la quantité σ et de la période p de la configuration périodique initiale. On peut ainsi suivre l'évolution des propriétés d'absorption de la MS lorsque l'on passe d'une distribution ordonnée à une distribution de plus en plus désordonnée. Dans la suite, nous caractériserons les distributions générées par la méthode MCMC par la valeur de σ et la donnée de la période p initiale qui définit la densité de piliers résonants sur la MS. Lorsque nous emploierons l'expression « augmentation du désordre » ou « augmentation de la quantité de désordre », nous ferons exclusivement référence à une augmentation de la valeur de σ utilisée pour générer les distributions de positions des piliers. Dans la suite, afin de pouvoir comparer les niveaux de désordre pour différentes valeurs de densités de piliers, nous rapporterons la donnée de σ à la valeur de la période en donnant systématiquement la valeur du rapport σ/p . En effet, plus que le déplacement en valeur absolue, ce qui importe est de connaître la proportion du déplacement vis-à-vis de la période pour quantifier dans quelle mesure le réseau initial est perturbé.

II33 Caractérisation des propriétés d'hyperuniformité des distributions par le facteur de structure

Une propriété importante des positions générées par la procédure MCMC de Metropolis Hastings est que la distribution obtenue est hyperuniforme, contrairement aux distributions générées par la première méthode. Cette propriété est vraie tant pour des distributions de particules de diamètre ou de densité négligeables qu'on appelle les « motifs Einstein » [15], que pour des distributions denses. Le caractère hyperuniforme dans le cas de distributions denses de particules en dimension quelconque est encore un problème ouvert de la recherche mathématique, mais les études numériques tendent à prouver le caractère hyperuniforme de ce type de distribution. D'ailleurs, l'équipe de David Dereudre en a montré l'hyperuniformité en dimension 2, qui nous intéresse ici [92].

D'un point de vue physique, le caractère hyperuniforme d'une certaine distribution de particules dans un domaine de l'espace se pose un peu différemment : plus que l'aspect seulement mathématique de l'hyperuniformité ou non d'un système, ce qu'il faut déterminer pour ce système est comment le caractère hyperuniforme se traduit sur les propriétés physiques en fonction des grandeurs caractéristiques mises en jeu dans ce système. L'hyperuniformité se caractérise par $S(\mathbf{k})=0$ pour $|\mathbf{k}|\rightarrow 0$ (voir paragraphe I232), où \mathbf{k} correspond physiquement au vecteur d'onde :

$$\mathbf{k}_{//} = \mathbf{k}_{i//} - \mathbf{k}_{d//} \quad (31)$$

Dans cette expression, $\mathbf{k}_{i//}$ et $\mathbf{k}_{d//}$ sont les composantes des vecteurs d'onde incident et diffusé respectivement, dans le plan (x,y) de la MS. Ainsi, seule la valeur de $S(\mathbf{k}_{//})$ dans le domaine de variation $[k_{\min} ; k_{\max}]$ de la différence $\mathbf{k}_{i//}-\mathbf{k}_{d//}$ est pertinente pour interpréter le comportement physique de l'ensemble désordonné. C'est ce qui explique dans [63] pourquoi les propriétés de diffusion d'une distribution hyperuniforme furtive sont si différentes lorsque $\mathbf{k}_{//}$ appartient ou non au domaine K où $S(\mathbf{k}_{//})$ est nul (voir paragraphe I321 de l'introduction). Nous allons donc dans un premier temps estimer le vecteur d'onde $\mathbf{k}_{//}$ dans nos simulations, puis calculer le facteur de structure des différentes distributions qui nous intéresseront par la suite en fonction de la densité de MA sur la MS et du paramètre de désordre σ/p .

Calculons tout d'abord le domaine du module du vecteur d'onde $\mathbf{k}_{//}$. Nous emploierons dans nos simulations une onde en incidence normale pour l'excitation des MS, donc $\mathbf{k}_{i//}=0$ et donc $\mathbf{k}_{//} = -\mathbf{k}_{d//}$. D'autre part, le domaine de fréquences considéré sera [200 ; 500] THz. Le module k_0 du vecteur d'onde du champ EM incident sera donc compris dans l'intervalle $[k_{0min} ; k_{0max}] = \left[\frac{2\pi f_{min}}{c} ; \frac{2\pi f_{max}}{c} \right] \sim [4,2 * 10^{-3} ; 1 * 10^{-2}] \text{ rad. nm}^{-1}$. Or, $|\mathbf{k}_d| = k_0$ donc $|\mathbf{k}_{d//}| < k_0$. Il y a donc deux cas limites : d'abord, si \mathbf{k}_d est colinéaire au plan de la MS, alors $k_{d//}=k_0$, et d'autre part si \mathbf{k}_d est orthogonale à la MS, alors $k_{d//}=0$. En résumé, le domaine de vecteur d'onde qui nous intéresse dans le calcul du facteur de structure est donc $[0 ; k_{0max}] = [0 ; 1 * 10^{-2}] \text{ rad. nm}^{-1}$.

Nous allons désormais tracer les facteurs de structure associés aux distributions sur lesquelles nous travaillerons. Les distributions de type binomiales sans recouvrement sont isotropes, c'est-à-dire que la densité de piliers est constante quelle que soit la direction, car les lois de position en x et y sont uniformes dans le domaine. En revanche, pour les distributions par perturbation de réseaux périodiques, ce n'est plus vrai. En effet, pour de faibles perturbations, la distribution obtenue reste très proche de la distribution périodique, qui est évidemment très anisotrope. Dans ce cas, la densité de piliers est non nulle dans les directions très spécifiques associées aux nœuds du réseau, et nulle ailleurs. Compte tenu de l'anisotropie, le facteur de structure $S(\mathbf{k}_{//})$ est une fonction vectorielle qui dépend de $|\mathbf{k}_{//}|$ mais aussi de la direction de $\mathbf{k}_{//}$ (nous notons $k_{//}$ le module de $\mathbf{k}_{//}$). Cependant, nous allons faire le choix de ne représenter les facteurs de structure des distributions qu'en fonction de $k_{//}$, en effectuant une moyenne angulaire de S en fonction de l'orientation de $\mathbf{k}_{//}$ [14]. Cela permettra de représenter les facteurs de structure en une dimension et de les comparer plus facilement en fonction du paramètre de désordre σ/p .

Nous calculons le facteur de structure par l'expression

$$S(\mathbf{k}) = \frac{1}{N} \left| \sum_{i=1}^N e^{-j\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_i} \right|^2 \quad (32)$$

Cette expression correspond à l'expression (8) présentée au paragraphe I231. On calcule cette expression pour dix distributions de $N=100 \times 100$ piliers et $k_{//} = \frac{2n\pi}{D}$ [13], avec $D=100p$, p étant la période du réseau initial. Une moyenne angulaire est effectuée pour chaque valeur de $k_{//}$ pour une orientation de $\mathbf{k}_{//}$ variant de 0 à 2π par pas angulaire de $2\pi/1000$. Enfin, le facteur de structure S est moyenné sur les dix distributions. La *Figure 36* montre le facteur de structure pour $p=520$ nm, $d=126$ nm pour différentes valeurs de σ/p . Le diamètre de $d=126$ nm est le diamètre qui va nous intéresser particulièrement par la suite, comme nous le montrerons. L'encart montre un zoom sur les valeurs de S autour de la position du premier pic de Bragg en $k_{//}=2\pi/p$. La barre verticale en $k_{//}=1 \times 10^{-2}$ rad.nm⁻¹ délimite le domaine des vecteurs d'onde qui nous intéresse vis-à-vis du comportement physique d'absorption des distributions.

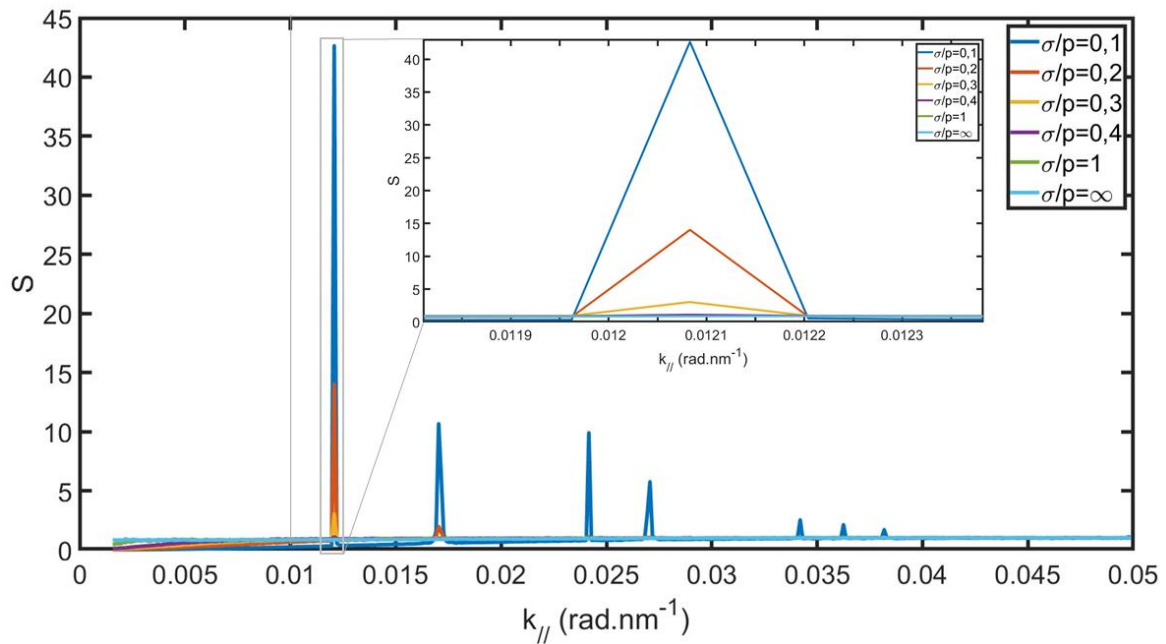


Figure 36 Moyenne du facteur de structure de 10 distributions de 100×100 piliers de diamètre $d=126$ nm et de période initiale $p=520$ nm pour différentes valeurs de désordre σ/p . L'encart représente un zoom sur les valeurs du premier pic de Bragg

On peut remarquer que le facteur de structure du réseau de plus faible perturbation $\sigma/p=0,1$ exhibe des pics de Bragg aux sept premières positions $k_{ij} = \sqrt{i^2 + j^2} \frac{2\pi}{p}$, avec i et j deux entiers naturels non tous les deux nuls. Les distributions de paramètres $\sigma/p \leq 0,3$ possèdent également un pic à la position du premier pic de Bragg, même si ce pic est d'amplitude clairement décroissante pour σ/p croissant (voir l'encart de la *Figure 36*). Toutes les courbes finissent par converger pour $k_{//}$ suffisamment grand, vers $S=1$. Le facteur de structure pour le cas périodique $\sigma/p=0$ n'a pas été représenté à cause des amplitudes des pics de Bragg très fortes qui perturberaient la lisibilité du graphique.

Ainsi, comme on peut s'y attendre intuitivement, l'augmentation progressive de la quantité de désordre supprime le caractère périodique de la distribution. Le premier pic de Bragg, le plus intense, disparaît complètement à partir d'un désordre $\sigma/p=0,4$. Comme expliqué plus tôt, le domaine de variation de $k_{//}$ qui nous intéresse plus particulièrement est le domaine $k_{//}<10*10^{-3}$ rad.nm⁻¹, délimité par la barre verticale grise sur le graphique. La *Figure 37* montre un zoom sur la partie correspondante de la courbe.

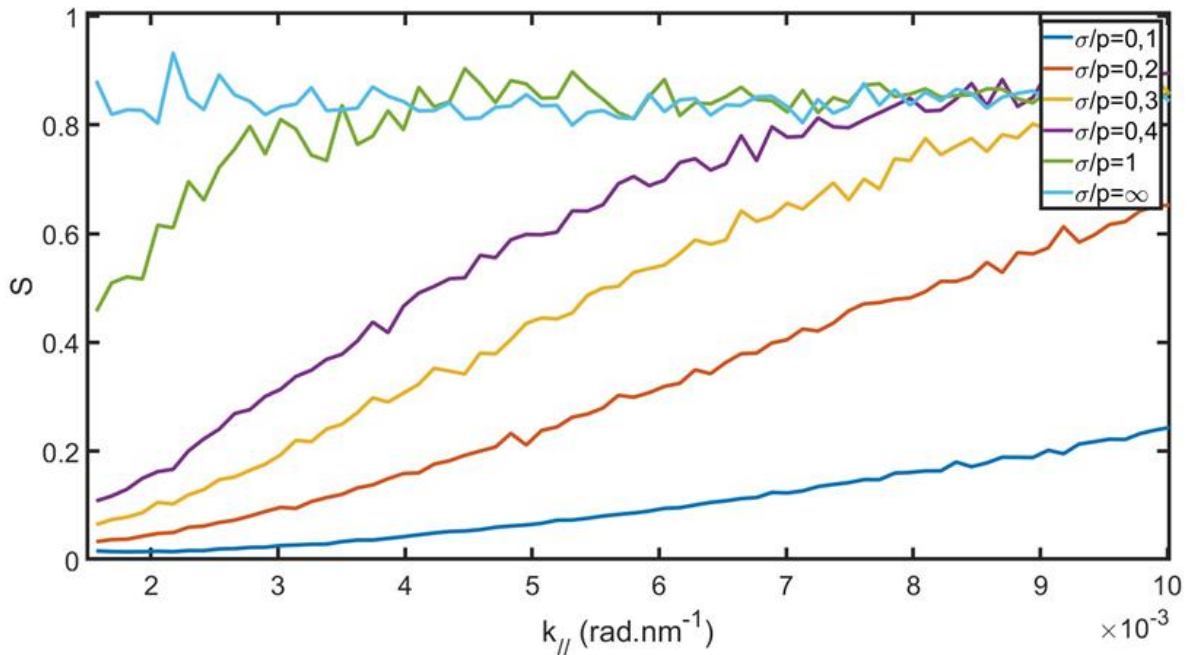


Figure 37 Zoom sur le domaine $k_{//} \sim 0$ des facteurs de structure de la Figure 36

On remarque que le comportement de $S(k_{//})$ pour $k_{//} \sim 0$ est clair : plus le paramètre de désordre augmente, plus la valeur de $S(k)$ s'éloigne rapidement de 0 lorsque $k_{//}$ augmente. En $k_{//}=10*10^{-3}$ rad.nm⁻¹, les facteurs de structure des distributions de paramètre $\sigma/p \geq 0,3$ sont très proches, autour de 0,8. En revanche, le facteur de structure des distributions $\sigma/p=0,1$ et $0,2$ est toujours nettement inférieur à 1 en $k_{//}=10*10^{-3}$ rad.nm⁻¹ même s'il augmente assez linéairement avec $k_{//}$ dans le domaine de la *Figure 37*. La distribution binomiale sans recouvrement associée au paramètre $\sigma/p=\infty$ n'est pas hyperuniforme, ainsi le facteur de structure correspondant ne semble pas converger vers 0 lorsque k diminue et est très proche de valoir 1 sur tout le domaine, comme pour une distribution de Poisson, contrairement à toutes les autres distributions. Même pour les distributions de paramètre $\sigma/p=1$, le facteur de structure finit par diminuer lorsque $k_{//} \rightarrow 0$. Néanmoins, la courbe associée à $\sigma/p=1$ est très proche de celle de $\sigma/p=\infty$, et il est ainsi à prévoir que le comportement de diffusion des distributions de paramètre $\sigma/p=1$ soient similaires à celui de distributions complètement désordonnées. Il est à noter qu'il est complexe de représenter $S(k)$ pour $k_{//}$ arbitrairement proche de 0, à cause de l'existence d'un point singulier en $k_{//}=0$ où le facteur de structure vaut N quelle que soit la distribution (voir équation (32)), même les distributions hyperuniformes. C'est pour cette raison que nous nous limitons ici à la représentation de $S(k_{//})$ à partir de $k_{\min}=1,5*10^{-3}$ rad.nm⁻¹.

Nous allons désormais caractériser les distributions générées par perturbation de distributions périodiques de période $p=158$ nm. Les périodes $p=158$ nm et $p=520$ nm sont les périodes respectivement minimale et maximale des distributions auxquelles nous nous intéresserons dans la suite, d'où ce choix. Compte tenu des observations de la *Figure 35* notamment, nous nous attendons à ce que la condition de non recouvrement ait un effet significatif sur les distributions obtenues pour les fortes densités contrairement aux faibles densités (voir *Figure 34*). Nous allons donc représenter le facteur de structure pour cette période pour un diamètre nul des piliers puis un diamètre de 126 nm, en *Figure 38* et *Figure 40* respectivement, pour estimer dans quelle mesure la contrainte de non recouvrement modifie le facteur de structure pour des densités importantes de piliers.

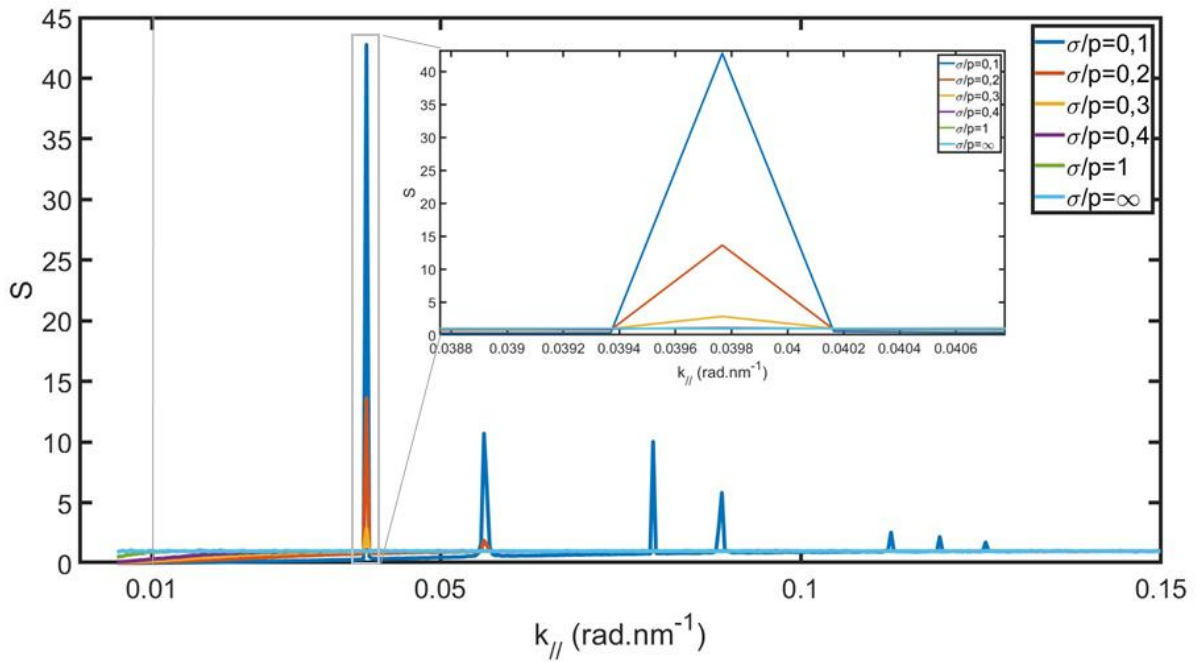


Figure 38 Moyenne du facteur de structure de 10 distributions de 100×100 piliers de diamètre $d=0$ nm et de période initiale $p=158$ nm pour différentes valeurs de désordre σ/p . L'encart représente un zoom sur les valeurs au niveau du premier pic de Bragg

On remarque en comparant les *Figure 36* et *Figure 38* que le facteur de structure de distributions très diluées de période $p=520$ nm et de diamètre $d=126$ nm est presque identique à celui de la distribution de période $p=158$ nm et $d=0$ nm, à une dilatation de l'échelle horizontale près, d'un facteur $520/158$, ce qui est logique. En effet, en l'absence de contrainte sur le positionnement des piliers liée à la condition de non recouvrement, deux distributions de périodes différentes $p_1 < p_2$ et de paramètre σ/p identique seront identiques par dilatation des positions \mathbf{r}_i d'un facteur p_2/p_1 si l'on passe de la distribution de période initiale p_1 à la distribution de période p_2 . Or selon l'expression (32), cela implique une égalité des facteurs de structure à la condition $S_{p_1}(k_0) = S_{p_2}\left(k_0 * \frac{p_1}{p_2}\right)$, si l'on note S_{p_1} le facteur de structure pour la distribution de période initiale p_1 , et S_{p_2} celui associée à p_2 . C'est pourquoi ici $S_{158}(k) = S_{520}\left(\frac{158}{520}k\right)$, à σ/p identique. Ainsi, pour ces distributions, on n'a pu représenter le facteur de structure qu'à partir de $k_{\min}=5*10^{-3}$ rad.nm $^{-1}$.

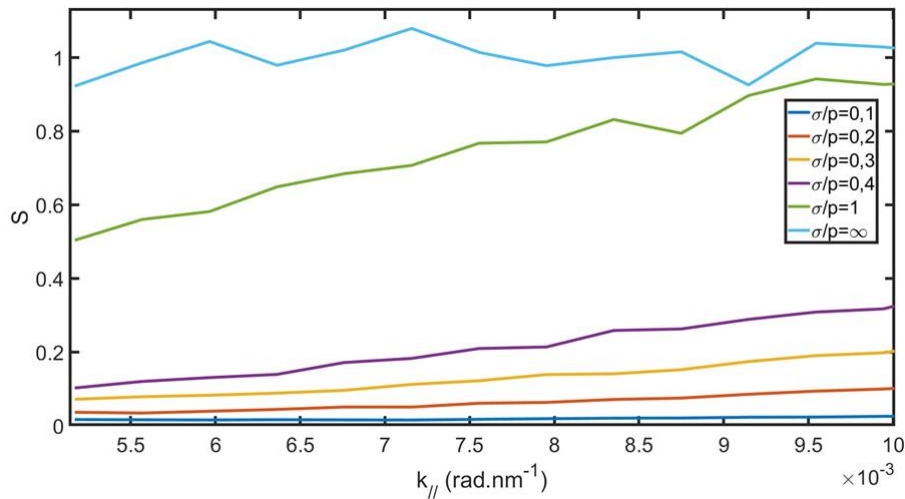


Figure 39 Zoom sur le domaine $k_{||} \sim 0$ à gauche du trait vertical de la Figure 38

La Figure 39 représente le facteur de structure pour $k_{||} < 10 \cdot 10^{-3} \text{ rad.nm}^{-1}$. L'allure des Figure 37 et Figure 39 semble différente entre les cas $p=520 \text{ nm}$, $d=126 \text{ nm}$ et $p=158 \text{ nm}$, $d=0 \text{ nm}$ autour de $k_{||} \sim 0$ à cause de la dilatation de l'espace des $k_{||}$ en abscisses lorsque l'on diminue la période. En réalité, si l'on compare le domaine $[1,5 \cdot 10^{-3} ; 3 \cdot 10^{-3}] \text{ rad.nm}^{-1}$ de la Figure 37 avec le domaine dilaté $[5 \cdot 10^{-3} ; 1 \cdot 10^{-2}] \text{ rad.nm}^{-1}$ correspondant de la Figure 39, on remarque que les courbes correspondantes sont quasi identiques. Cela montre que la condition de non recouvrement n'a pas d'influence notable sur la statistique de la distribution pour la période $p=520 \text{ nm}$ et de densité 5%. En Figure 40 et Figure 41, nous représentons le facteur de structure en fonction de σ/p pour $p=158 \text{ nm}$ mais cette fois-ci pour un diamètre $d=126 \text{ nm}$.

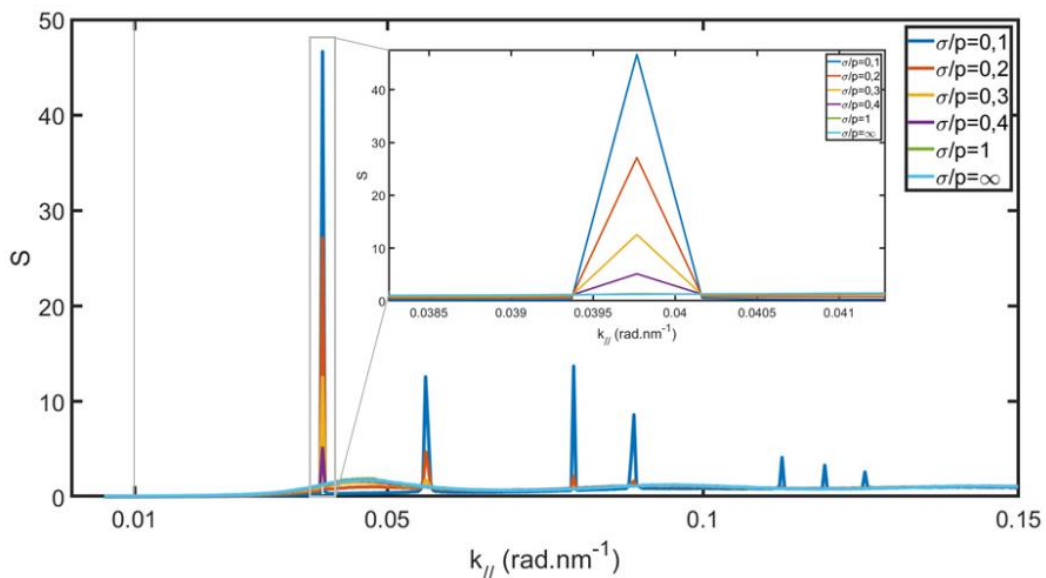


Figure 40 Moyenne du facteur de structure de 10 distributions de 100×100 piliers de diamètre $d=126 \text{ nm}$ et de période initiale $p=158 \text{ nm}$ pour différentes valeurs de désordre σ/p (encart : zoom sur le premier pic de Bragg)

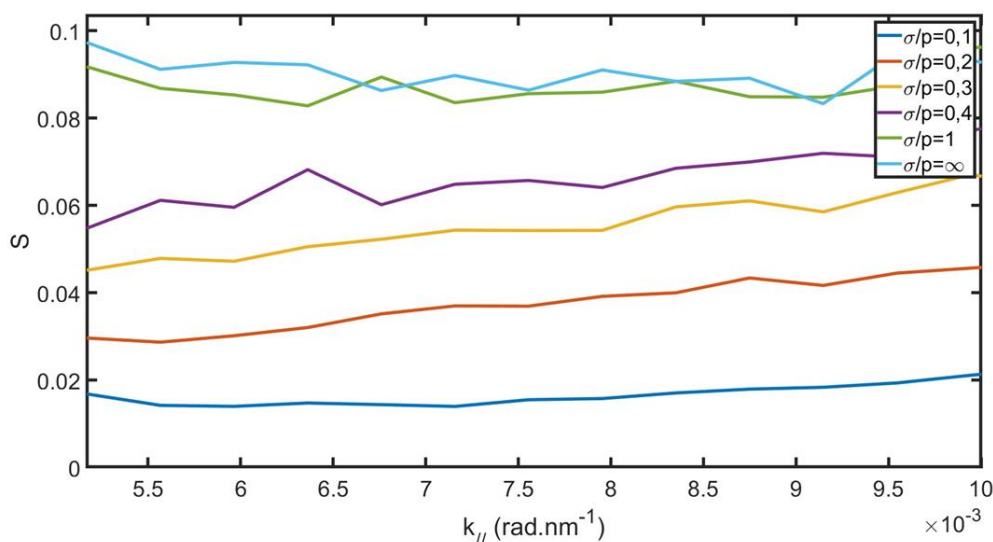


Figure 41 Zoom sur le domaine $k_{\parallel} \sim 0$ à gauche du trait gris vertical de la figure précédente

On peut remarquer une nette différence des propriétés de $S(k_{\parallel})$ pour cette densité entre les cas où le diamètre des piliers est nul et où il vaut 126 nm, c'est-à-dire lorsque la condition de non recouvrement entre en jeu. La condition de non recouvrement ajoute une régularité supplémentaire. Par exemple, la condition de non recouvrement entraîne l'augmentation de l'amplitude des pics de Bragg par rapport aux cas des distributions diluées. En outre, on voit apparaître un pic à la position $2\pi/158$ du premier pic de Bragg pour les distributions de paramètre $\sigma/p=0,4$ (voir la courbe violette de l'encart de la Figure 40) qui n'existait pas dans les cas dilués des Figure 36 et Figure 38. C'est la marque d'une plus faible perturbation du réseau initial, ce qui est logique, dans la mesure où comme on l'a vu au paragraphe précédent, la condition de non-recouvrement interdit des déplacements à cause des conflits de position, ce qui limite les déplacements possibles. Le facteur de structure de la distribution $\sigma/p=\infty$ est lui-aussi très perturbé : d'une part, la courbe du facteur de structure de cette distribution montre une légère augmentation autour de l'abscisse $k_{\parallel} \sim 0,05 \text{ rad.nm}^{-1} = 2\pi/126$, ce qui signifie une augmentation du nombre de piliers de distance centre à centre de 126 nm, c'est-à-dire des piliers qui se touchent bord à bord. D'autre part, le comportement pour $k_{\parallel} \sim 0$ est très différent : s'il est proche de 1 sur tout le domaine $[5 \cdot 10^{-3}; 1 \cdot 10^{-2}] \text{ rad.nm}^{-1}$ dans le cas d'un diamètre nul, il évolue au contraire autour de 0,1 dans le cas d'un diamètre de 126 nm. Cela prouve que les contraintes de non recouvrement induisent des corrélations de positions à longue portée. Cela est aussi vrai pour les distributions de paramètres $\sigma/p \leq 1$: la croissance de S avec σ/p est conservée par rapport au cas dilué, mais les facteurs de structure correspondants sont uniformément diminués par rapport au cas $d=0$ (voir Figure 39 et Figure 41). Cela est dû à l'ordre partiel imposé par la condition de non recouvrement. Il est à noter que les légendes indiquent les écarts types de la loi cible, mais comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, les écarts types réellement obtenus sont plus faibles, ce qui explique la faible amplitude de variation du facteur de structure en fonction de σ/p dans le cas de la forte densité étudiée.

En conclusion, il apparaît que la densité joue un rôle important vis-à-vis de la statistique du désordre. Pour la densité de 5%, la condition de non recouvrement ne perturbe pas la distribution obtenue par

rapport à la distribution correspondante de densité nulle. Ainsi, le facteur de structure dans le domaine $k_{\parallel} < 10 \cdot 10^{-3} \text{ rad.nm}^{-1}$ qui nous intéresse est très différent en fonction de la valeur du paramètre de désordre σ/p : pour $\sigma/p = \infty$, le facteur de structure varie autour de 1 comme pour une distribution de Poisson, tandis que pour $\sigma/p = 0,1$, le facteur de structure est proche de 0 lorsque $k_{\parallel} \rightarrow 0$ et augmente progressivement pour arriver à 0,2 environ lorsque $k_{\parallel} = 10 \cdot 10^{-3} \text{ rad.nm}^{-1}$. Pour la densité la plus forte, c'est très différent : les facteurs de structure sont tous relativement proches de 0 sur le domaine $k_{\parallel} < 10 \cdot 10^{-3} \text{ rad.nm}^{-1}$, à cause de la régularité imposée par la condition de non recouvrement qui équivaut à une condition de distance minimale centre à centre de 126 nm.

Comme nous l'avons vu en introduction, le facteur de structure est un paramètre qui est lié à la quantité de champ rayonné par une structure. Par exemple, en régime de diffusion simple, l'intensité rayonnée est proportionnelle au facteur de structure dans les systèmes de particules multiples non résonantes (voir paragraphe I321, formule (11)). Ainsi, il semble y avoir deux effets antagonistes vis-à-vis du champ rayonné par les MS : d'une part, l'augmentation de la densité des piliers augmente la quantité de diffuseurs par unité de surface, mais dans le même temps, la régularité des positions des diffuseurs est plus grande de par la condition de non recouvrement, et donc le facteur de structure est plus faible pour les distributions denses que pour les distributions plus diluées (voir *Figure 37* et *Figure 41*). On peut donc s'attendre au contraire à une diminution du champ diffusé lorsque la densité augmente. De même, l'examen du facteur de structure permet d'envisager une forte dépendance de la quantité de champ diffusé vis-à-vis de σ/p pour les distributions diluées, et au contraire une faible influence de σ/p pour les distributions denses. Cependant, étant donné que le nombre de diffuseurs augmente pour ces dernières distributions, la dépendance du champ diffusé avec la valeur σ/p est complexe. Ainsi, nous prendrons soin de calculer la diffusion par les distributions que nous simulerons.

Dans la suite, nous nous attendons donc à observer à densité donnée, un optimum d'absorption en fonction de σ/p lié à deux phénomènes : d'une part, l'optimisation des couplages telle que décrite en introduction, permise par l'introduction d'un désordre contrôlé, tout en limitant autant que possible le désordre afin de limiter la diffusion par la structure, qui est un mécanisme de pertes pour l'absorption. Nous verrons dans quelle mesure ces attentes sont confirmées pour les différentes densités explorées.

II4 Simulation des MS

Nous allons employer une approche par simulation pour calculer le comportement d'absorption EM de notre MS, afin dans un premier temps de dimensionner la MS dans le cas d'une distribution périodique des piliers résonants (paragraphe II41), puis pour comprendre la modification de ces propriétés lorsque du désordre est introduit (paragraphe suivants). Ceci permettra de guider la fabrication des MS à laquelle nous allons par la suite nous attacher.

II41 Conception de la MS périodique optimale

Nous allons dans un premier temps étudier le fonctionnement de la MS dans le cas d'une disposition périodique des piliers. Dans ce cas, comme expliqué en introduction, la MS a un comportement très résonant car tous les résonateurs répondent en phase à l'onde incidente. Nous souhaitons dimensionner une MS qui absorbe parfaitement un rayonnement en incidence normale à la fréquence $f=375$ THz, ce qui correspond à une longueur d'onde dans le vide de $\lambda=c/f=800$ nm. Il s'agit donc de dimensionner les paramètres géométriques d'une maille du réseau. Nous choisissons de travailler sur un réseau de période carrée. Une maille élémentaire de ce réseau est montrée en *Figure 26*. Les paramètres géométriques à définir sont les dimensions des piliers, c'est-à-dire leur hauteur h et leur diamètre d , l'épaisseur des couches planes d'isolant de SiO_2 h_d et du plan de masse en or h_m , et enfin la période de répétition des piliers p qui correspond à la distance séparant le centre de deux piliers consécutifs du réseau carré. Tout d'abord, l'épaisseur du plan de masse h_m est choisie de manière à interdire la transmission EM à travers la MS, de sorte que seule la réflexion EM de la MS soit à prendre en considération pour obtenir une absorption parfaite. Étant donnée l'épaisseur de peau d'environ 30 nm aux fréquences optiques dans l'or, nous choisissons une épaisseur du plan de masse $h_m=100$ nm. Le coefficient de transmission à travers la structure est donc négligeable. L'absorption A s'exprime alors simplement $A = 1 - R$, où R est le coefficient de réflexion en puissance. Pour caractériser le fonctionnement de la MS, il suffit donc de définir un unique port de Floquet au-dessus de la structure. Il existe un unique paramètre S complexe associé à ce port d'entrée/sortie que nous appellerons S_{11} dans la suite. Le coefficient de réflexion est calculé comme $R = |S_{11}|^2$. Nous souhaitons ainsi minimiser le coefficient de réflexion pour augmenter l'absorption.

Le fonctionnement de la MS pour une disposition périodique des piliers est largement documenté dans la littérature, comme expliqué en introduction : le choix d'une géométrie des résonateurs et de l'épaisseur du diélectrique définit le comportement d'absorption de la MS, modélisée par un coefficient de qualité d'absorption, alors que la période de répétition définit le couplage entre la MS et l'espace libre d'où provient l'excitation EM ; on peut la caractériser par un coefficient de qualité radiatif. La condition d'absorption parfaite correspond au cas où le coefficient de qualité d'absorption est égal au coefficient de qualité radiatif [34]. On appelle cet état de couplage entre la MS et l'excitation en espace libre, le couplage critique.

Nous allons définir les paramètres géométriques de la MS pour avoir cette condition d'absorption parfaite à la fréquence 375 THz. Les paramètres qui ont la plus grande influence sur la fréquence de résonance sont le diamètre d des piliers et l'épaisseur h_d du diélectrique. L'épaisseur du diélectrique n'est pas un paramètre libre de la géométrie, elle doit être choisie dans un domaine de dimensions très restreint pour répondre à une double exigence : elle doit être suffisamment faible pour garantir d'une part un fort couplage entre la résonance plasmonique localisée des piliers et la résonance plasmonique miroir du plan de masse pour obtenir une résonance MIM intense : h_d ne doit pas dépasser quelques dizaines de nm. D'autre part, elle doit être suffisamment grande pour pouvoir être fabriquée par les

techniques disponibles en salle blanche, et garantir d'autre part la formation de deux interfaces métal/isolant distinctes. Compte tenu de ces observations, en fixant l'épaisseur de la couche diélectrique de SiO₂ à $h_d=20$ nm, on peut déterminer par une étude paramétrique la dimension d des piliers pour obtenir la résonance à la fréquence souhaitée en introduisant dans un premier temps des valeurs arbitraires pour les autres paramètres. La *Figure 42* montre l'évolution de la valeur du paramètre $|S_{11}|$ en fonction de la fréquence d'excitation avec une excitation par le mode fondamental TE de Floquet en polarisation \mathbf{E}/\mathbf{y} et pour un ensemble de paramètres $(h_m, h_d, h \text{ et } p) = (100, 20, 100, 450)$ nm. Le diamètre d varie dans la plage [106 ; 146] nm.

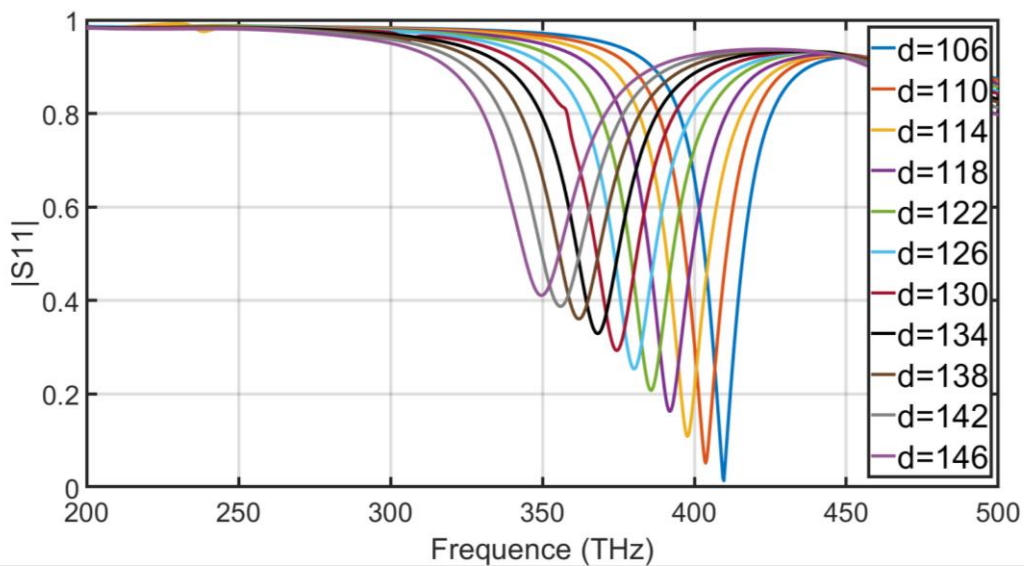


Figure 42 $|S_{11}|$ en fonction de la fréquence pour différentes valeurs de d

Le diamètre des piliers exerce une influence importante sur la fréquence de résonance comme le montre la variation de 4 nm d'une courbe à l'autre. On voit que la fréquence de résonance a une évolution contraire à celle de d : une MS constituée de résonateurs plus petits résonne à plus haute fréquence. Il s'agit d'une observation générale de la résonance plasmonique de NP, conforme aux mécanismes décrits en introduction (voir équation (9) du paragraphe I311). On peut constater que sur ce domaine de variation du diamètre des piliers, l'évolution de la fréquence de résonance en fonction du diamètre des piliers est relativement linéaire. La MS résonne à une fréquence de 375 THz pour un diamètre des piliers de 126 nm, c'est la valeur que nous retiendrons par la suite. En fixant cette valeur, nous pouvons optimiser les autres paramètres en supposant qu'ils sont indépendants entre eux, pour garantir les conditions du couplage critique à 375 THz. Les figures suivantes montrent des courbes paramétriques du paramètre $|S_{11}|$ en fonction de la fréquence pour les paramètres h (variant entre 20 et 100 nm) et p (variant entre 320 et 720 nm) avec la même excitation que précédemment.

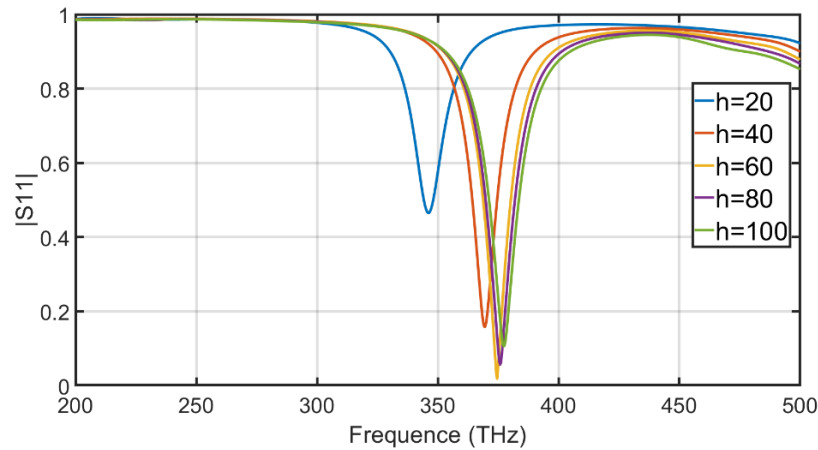


Figure 43 $|S_{11}|$ en fonction de la fréquence pour différentes valeurs de h

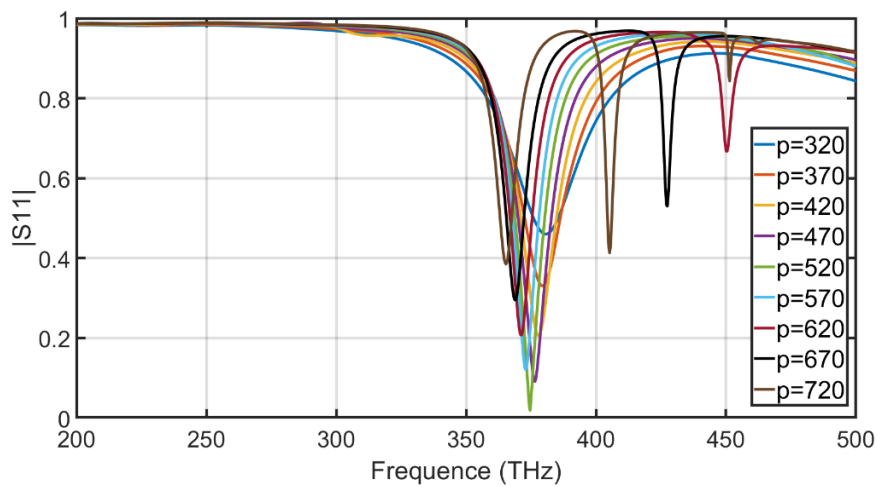


Figure 44 $|S_{11}|$ en fonction de la fréquence pour différentes valeurs de p

Nous voyons que la position fréquentielle est peu dépendante de la valeur de h , sauf en cas de très faibles valeurs. Dans le domaine $h \in [40 ; 100]$ nm (voir Figure 43), la résonance se produit pour une fréquence voisine de 375 THz. Nous retiendrons la valeur $h=60$ nm (courbe jaune de la Figure 43).

La valeur du minimum de $|S_{11}|$ à la résonance dépend fortement de la valeur de la période. La valeur de p associée à un minimum de $|S_{11}|$ est $p=520$ nm (courbe verte), nous retenons cette valeur. Nous voyons apparaître dans la bande de fréquence d'observation [200 ; 500] THz des minima supplémentaires à des fréquences supérieures pour les plus grandes valeurs de période ($p=620, 670$ et 720 nm). Il s'agit de modes de diffraction dont nous reparlerons dans la suite.

Nous avons observé la sensibilité de la fréquence de résonance vis-à-vis des différents paramètres géométriques via les figures précédentes. Pour finir, la Figure 45 montre l'évolution du $|S_{11}|$ en fonction du paramètre h_d :

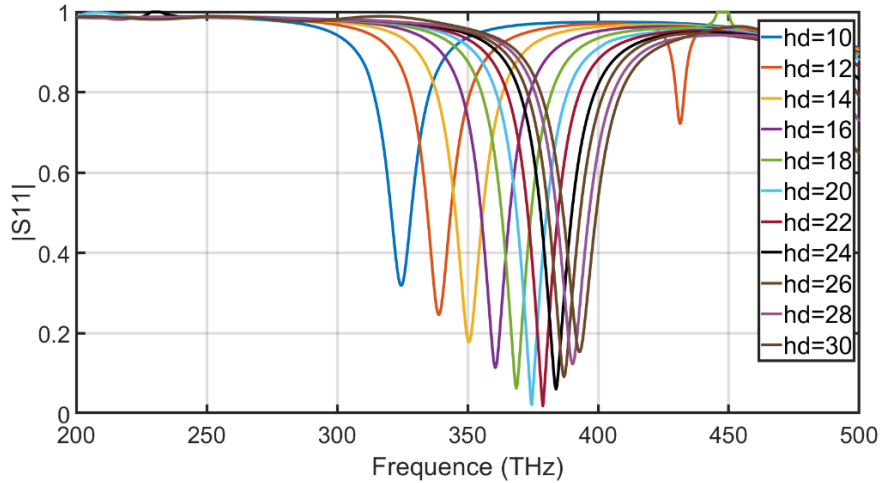


Figure 45 $|S_{11}|$ en fonction de la fréquence pour différentes valeurs de h_d

Nous voyons que l'épaisseur du diélectrique influe fortement sur la position fréquentielle du pic, surtout pour de faibles valeurs d'épaisseur, ainsi que sur la valeur du minimum. Ceci est logique compte tenu du fait que l'épaisseur du diélectrique définit l'intensité du couplage vertical des MA MIM. La valeur de $h_d=20$ nm correspond à un minimum de $|S_{11}|$ pour le choix des autres paramètres tels que nous les avons calculés précédemment. Nous travaillerons donc avec cette valeur $h_d=20$ nm par la suite.

Pour le dimensionnement de la MS, nous avons supposé, pour mener les études paramétriques, que les différents paramètres contribuaient de manière indépendante à l'évolution de la fréquence de résonance, ce qui est discutable. Vérifions donc finalement si la courbe du $|S_{11}|$ a bien un minimum en $f=375$ THz au point de fonctionnement $(h_m, h_d, h, d \text{ et } p) = (100 ; 20 ; 60 ; 126 ; 520)$ nm. La Figure 46 montre le $|S_{11}|$ en fonction de la fréquence d'excitation pour ce jeu de paramètres :

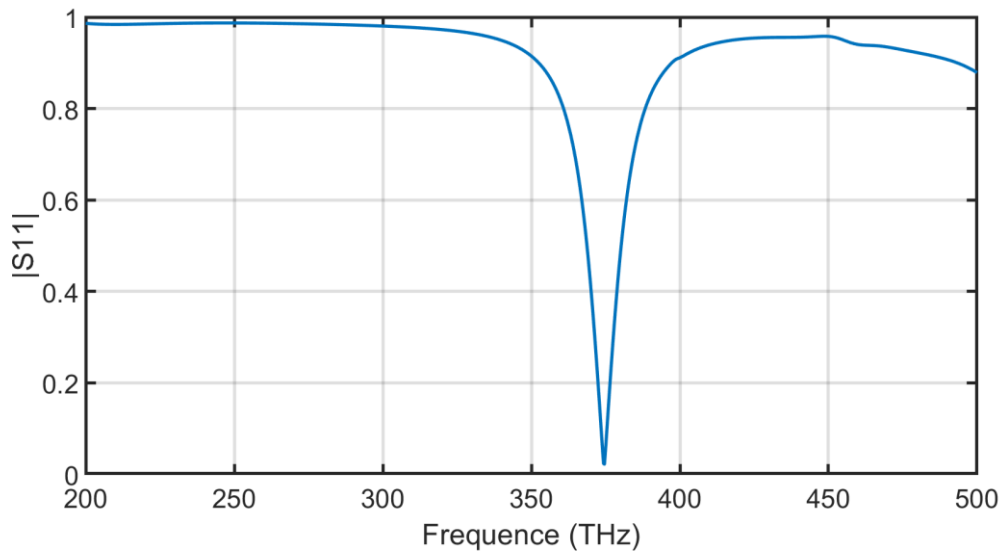


Figure 46 $|S_{11}|$ pour la MS de paramètres géométriques $h_m=100$ nm, $h_d=20$ nm, $h=60$ nm, $d=126$ nm, $p=520$ nm

Nous constatons bien pour cette combinaison de paramètres une résonance d'absorption $A = 1 - |S_{11}|^2 \sim 1$ à la fréquence 375 THz, ce qui montre par ailleurs que les différents paramètres géométriques

contribuent de manière indépendante à l'absorption de la MS. La configuration finale correspond à une densité ρ de piliers résonants de 5%, qui dépend uniquement de la période et du diamètre des piliers.

Pour vérifier le comportement EM de la MS et identifier la nature du mode excité à la fréquence de travail, nous traçons en figures suivantes le profil \mathbf{E} , \mathbf{H} , et \mathbf{P} (vecteur de Poynting) en coupe à la fréquence 375 THz, au niveau d'une cellule particulière du réseau pour une excitation polarisée selon l'axe y (le système de coordonnées est défini sur les figures).

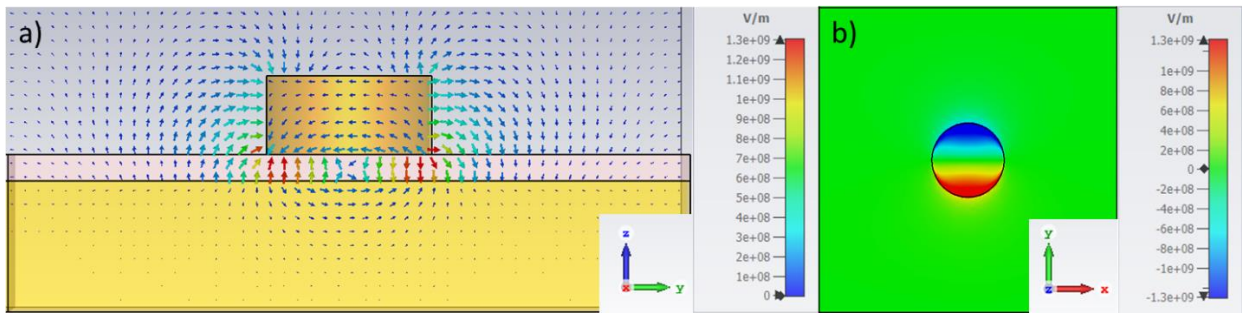


Figure 47 Carte de champ \mathbf{E} dans une cellule élémentaire de période $p=520$ nm à 375 THz a) en coupe verticale dans le plan (yz) passant par le milieu du pilier et b) composante E_z du champ \mathbf{E} en coupe horizontale dans le plan (xy) d'équation $z=120$ nm à la base du pilier

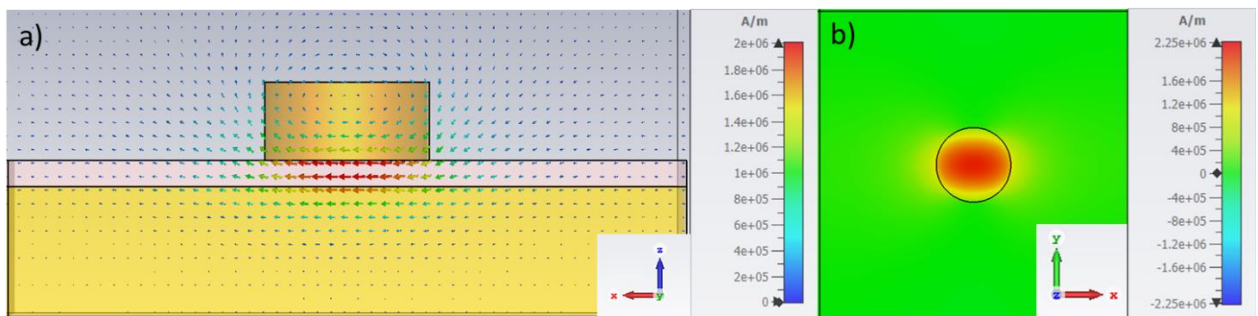


Figure 48 Carte de champ \mathbf{H} dans une cellule élémentaire de période $p=520$ nm à 375 THz a) en coupe verticale dans le plan (yz) passant par le milieu du pilier et b) composante H_x du champ \mathbf{H} en coupe horizontale dans le plan (xy) d'équation $z=120$ nm à la base du pilier

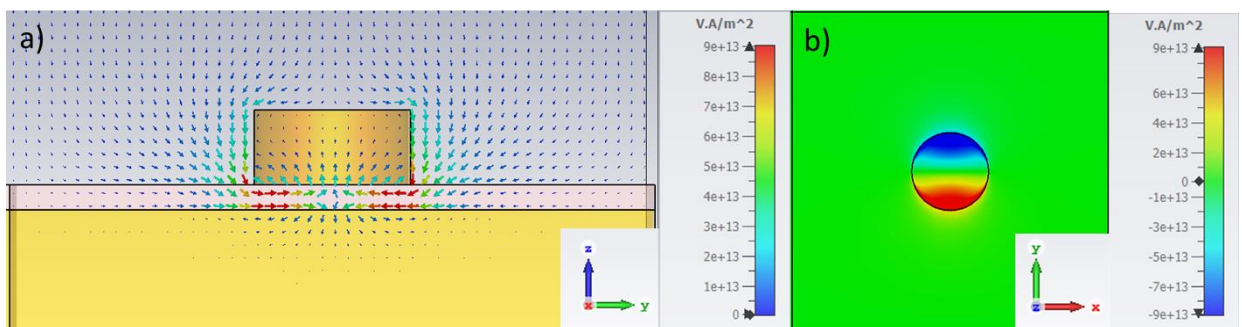


Figure 49 Carte de champ \mathbf{P} dans une cellule élémentaire de période $p=520$ nm à 375 THz a) en coupe verticale dans le plan (yz) passant par le milieu du pilier et b) composante P_y du champ \mathbf{P} en coupe horizontale dans le plan (xy) d'équation $z=120$ nm à la base du pilier

Les profils des champs \mathbf{E} , \mathbf{H} et \mathbf{P} sont conformes aux distributions attendues pour une excitation plasmonique d'une NP couplée à un plan de masse. Le champ \mathbf{E} , localisé dans la couche diélectrique au niveau des bords des piliers est anti parallèle de part et d'autre du pilier et orienté selon z (Figure 47a)

et b)), à l'origine de la boucle de courant qui produit un fort champ magnétique \mathbf{H} orienté selon la direction x sous le pilier dans la partie diélectrique (Figure 48a) et b)). La puissance EM (Figure 49), est ainsi localisée dans la couche diélectrique sous chaque pilier dans la direction y . Nous désignerons par l'expression « mode MIM », la résonance liée à l'excitation de ce mode.

A titre de comparaison, la Figure 50b) montre le spectre de $|S_{11}|$ pour une cellule unitaire du réseau prise isolément. Il s'agit de la même géométrie que la cellule optimale précédente, mais simulée ici avec des conditions aux bords de type PML sur l'ensemble des côtés du domaine de simulation (voir Figure 50a)). Comme rappelé au paragraphe II23, les PML absorbent efficacement un champ EM en incidence normale : pour garantir la fiabilité de la simulation, un espace de $\lambda/2$ est introduit entre la structure et les bords du domaine de simulation. Un port de type « guide d'onde » de section rectangulaire d'aire $520 \times 520 \text{ nm}^2$ est ajusté pour exciter la structure par son mode fondamental polarisé selon la direction y .

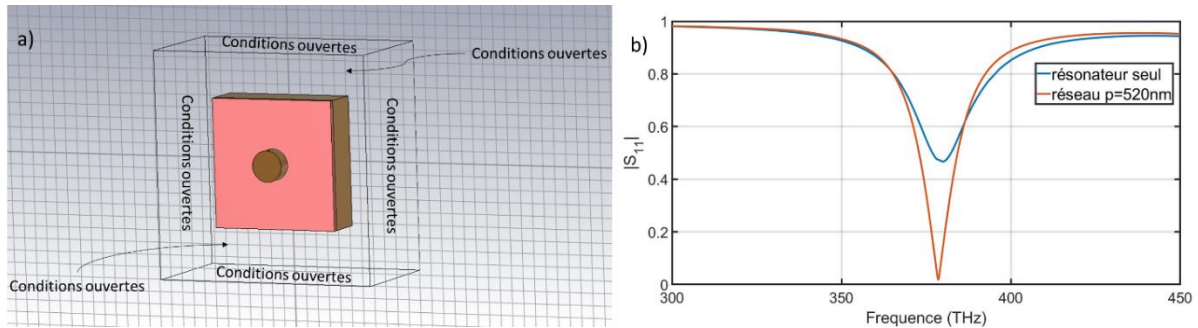


Figure 50 a) Structure simulée et conditions aux limites employées et b) $|S_{11}|$ correspondant en fonction de la fréquence

En Figure 51, les cartes de champ associées au minimum de réflexion à 380 THz sont représentées.

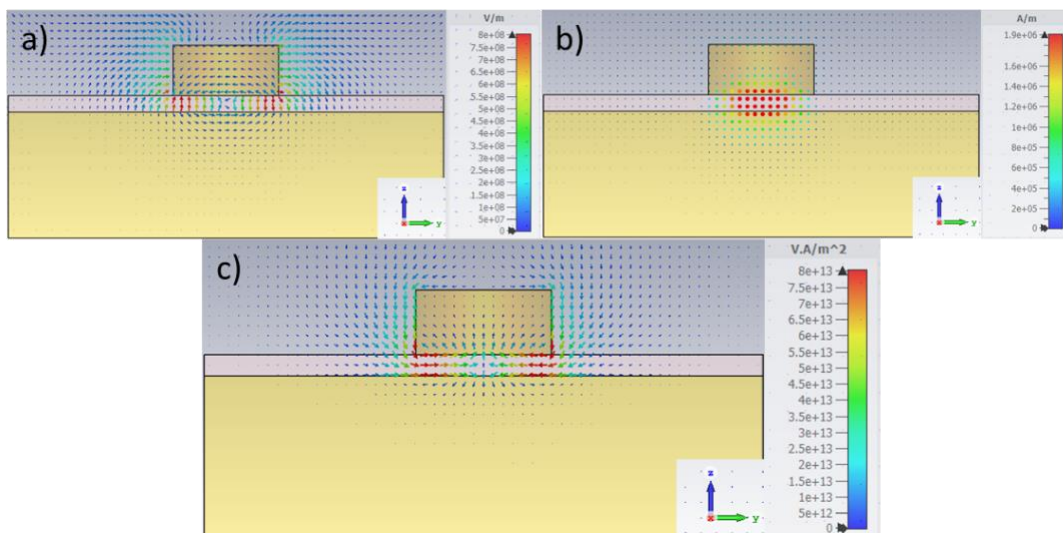


Figure 51 Cartes de champ a) électrique b) magnétique et c) du vecteur de Poynting dans le plan $x=0$ à $f=380 \text{ THz}$

Nous pouvons constater que le mode plasmonique MIM excité dans la structure périodisée existe également pour une cellule particulière isolée. En effet, les cartes de champ des Figure 51a), b) et c) à 380 THz, sont caractéristiques du mode MIM observé aux Figure 47, Figure 48 et Figure 49. Cela

souligne le caractère fondamentalement individuel du mode MIM. Cependant, la mise en réseau de ces résonateurs change les propriétés de la résonance. En comparant les courbes spectrales de la *Figure 50b*), nous pouvons observer un léger décalage fréquentiel vers les basses fréquences pour le mode de résonance du réseau $p=520$ nm par rapport au mode isolé. Cela montre l'existence d'un léger couplage en champ lointain entre les résonances individuelles : la résonance d'un pilier est excitée par les résonances des autres piliers agissant comme des sources secondaires excitant à leur tour la résonance individuelle de chaque pilier.

Nous avons défini un réseau périodique qui présente le mode MIM recherché à la fréquence $f=375$ THz souhaitée. Dans la suite, nous allons étudier l'évolution du comportement de ce mode lorsque l'on introduit du désordre dans la structure.

II42 Notions d'extinction et d'absorption

Il y a deux manières d'envisager la quantité de champ EM réfléchi par la MS. On peut d'une part considérer uniquement le champ réfléchi dans la direction d'incidence dite spéculaire. C'est l'approche de type « détection radar » mono statique. La part du champ non absorbé qui est rayonnée dans d'autres directions est perdue par le processus émission/réception et n'a pas besoin d'être considérée. On définit alors l'extinction E à partir des puissances associées aux champs incident P_i et réfléchi dans la direction spéculaire P_s par l'expression suivante :

$$E = 1 - \frac{P_s}{P_i} \quad (33)$$

Ici, la direction spéculaire est la direction normale. Cette grandeur permet donc de connaître la proportion de la puissance perdue par absorption dans la MS et par rayonnement dans les directions non normales.

D'autre part, d'un point de vue physique, on peut aussi considérer pour un système l'ensemble des canaux de réflexion : la réflexion spéculaire directe qui est liée à une désadaptation d'impédance empêchant l'intégralité de l'onde incidente d'interagir avec la MS d'une part, et le champ capté puis rayonné de nouveau par les piliers se comportant comme des nano-antennes d'autre part. En prenant en compte ces contributions, on peut connaître le champ réfléchi total P_r . On définit alors l'absorption A par l'expression suivante :

$$A = 1 - \frac{P_r}{P_i} \quad (34)$$

Cette grandeur mesure uniquement la puissance perdue par absorption. Puisque $P_s < P_r$ car $P_r = P_s + P_{ns}$, alors $A < E$. Le bilan des puissances est indiqué sur la *Figure 52* : P_i est la puissance incidente, P_s la réflexion dans la direction spéculaire, P_{ns} dans les directions non spéculaires, et P_a la puissance absorbée par la structure. Le bilan des puissances s'écrit : $P_i = P_s + P_{ns} + P_a$.

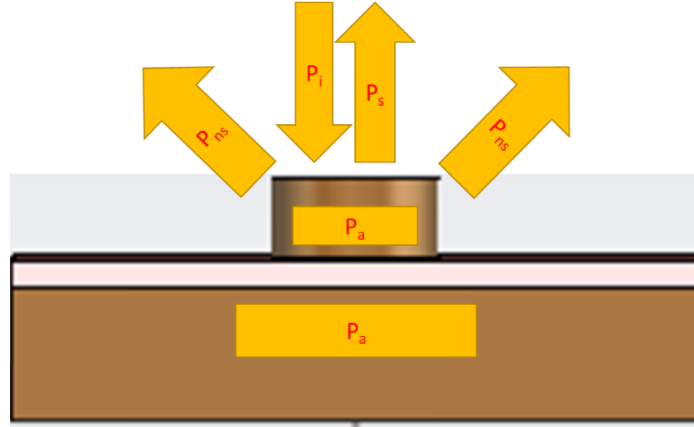


Figure 52 Bilan des puissances mises en jeu dans l'interaction de la structure avec l'onde incidente.

Aux fréquences qui nous intéressent, seul l'or dissipe le champ par pertes ohmiques, c'est pour cela que la puissance P_a absorbée par la structure est indiquée seulement dans les parties métalliques de la structure. Comme $P_r = P_s + P_{ns}$ et compte tenu des définitions (33) et (34) de E et A , on a :

$$E - A = \frac{P_{ns}}{P_i} \quad (35)$$

Ce qui signifie que pour définir correctement l'absorption, il faut prendre en compte les réflexions dans les directions non spéculaires. Il est à noter que le bilan des puissances de la Figure 52 est représenté au niveau d'un unique pilier mais en réalité ce bilan de puissances dépend de l'arrangement des piliers. Plus précisément, nous montrerons que la puissance rayonnée dans les directions non spéculaires est négligeable en configuration périodique, et apparaît lorsque du désordre est introduit.

Nous allons maintenant voir comment calculer les quantités A et E à partir de nos simulations. Nous avons vu précédemment que le champ contenu dans le domaine de simulation est représenté sur une base de modes qu'on appelle les modes de Floquet. Ces modes possèdent chacun une direction de propagation spécifique \mathbf{k}_{mn} définie au paragraphe II.23. Ainsi, les modes de Floquet fondamentaux contiennent la puissance du champ réfléchi dans la direction spéculaire, tandis que les modes supérieurs celle dans les directions obliques. La simulation permet de calculer le paramètre S_{11} pour chaque mode considéré de la base. Dans la suite, sauf mention du contraire, on s'intéressera à tous les modes propagatifs à l'intérieur du domaine de simulation. Chaque mode est donc représenté par son paramètre S_{11} en fonction de la fréquence, que nous appellerons $S_{11(i)}(f)$ pour le mode considéré i . On attribue au mode fondamental TE le numéro 1 et au mode fondamental TM le numéro 2. A partir de ces quantités, nous pouvons finalement exprimer la puissance P_s comme :

$$\frac{P_s}{P_i} = |S_{11(1)}|^2 + |S_{11(2)}|^2 \quad (36)$$

Nous pouvons également calculer P_r comme :

$$\frac{P_r}{P_i} = \sum_{i=1}^N |S_{11(i)}|^2 \quad (37)$$

Dans cette expression, N est le nombre total de modes de Floquet propagatifs. Ces expressions permettent de calculer l'extinction et l'absorption en fonction de la fréquence à partir d'une simulation. Il est à noter que l'on avait précédemment exprimé A par l'expression $A = 1 - R = 1 - |S_{11}|^2$. Dans cette expression, $|S_{11}|^2 = R$ et comme $R = P_r/P_i$, alors $|S_{11}|^2 = \sum_{i=1}^N |S_{11(i)}|^2$. Il s'agit en quelque sorte d'un paramètre « S_{11} total », qui comprend les contributions de tous les modes de Floquet.

Nous allons désormais étudier l'évolution de l'extinction et de l'absorption dans des structures avec ou sans désordre. Commençons par des distributions périodiques de piliers sur la MS. Comme on l'a vu au paragraphe II23, les modes fondamentaux de Floquet sont toujours propagatifs. En revanche, les modes d'ordre supérieur sont tous évanescents car dans les MS $p < \lambda$, et ainsi le module du vecteur d'onde \mathbf{k}_{mn} de ces modes est supérieur au vecteur d'onde incident $k_0 = 2\pi/\lambda$. La relation $k_{xmn}^2 + k_{ymn}^2 < k_0^2$ que l'on a vue au paragraphe II23 n'est donc jamais respectée si $(m,n) \neq (0,0)$. Donc dans ces cas, le champ réfléchi par la structure suit la direction normale uniquement. On a donc $A=E$.

Voyons maintenant comment évoluent les grandeurs A et E dans le cas de distributions désordonnées. Nous allons simuler deux MS de densités différentes de résonateurs : l'une est construite à partir d'un réseau perturbé de période initiale $p=158$ nm et un paramètre de désordre de $\sigma/p=0,1$ puis $0,4$, et l'autre à partir d'un réseau initial de $p=520$ nm et de même paramètre σ/p pour une excitation par le mode fondamental TE de Floquet dans les deux cas. Le domaine de simulation est dans les deux cas d'une taille relativement constante : $3,12 \times 3,12 \mu\text{m}^2$ pour les distributions de période initiale $p=520$ nm et $3,16 \times 3,16 \mu\text{m}^2$ pour $p=158$ nm. Par rapport au réseau périodique initial, en simulant cette super cellule, on augmente considérablement la période de répétition. Ainsi, la condition de propagation pour les modes de Floquet est satisfaite pour de nombreux modes : dans ces deux domaines, il existe 178 modes de Floquet propagatifs à la fréquence maximale de simulation 500 THz. Nous allons tracer l'absorption et l'extinction dans les deux cas de figure ainsi que l'écart entre les deux, en fonction de la fréquence. L'image insérée au sein de chaque graphique représente la distribution des piliers sur la MS simulée.

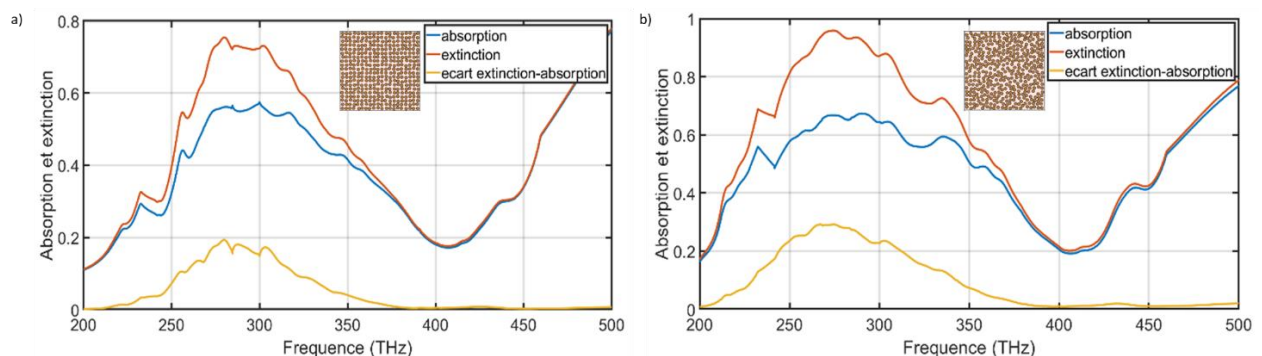


Figure 53 Extinction et absorption pour $p=158$ nm et $\sigma/p=$ a) 0,1 et b) 0,4

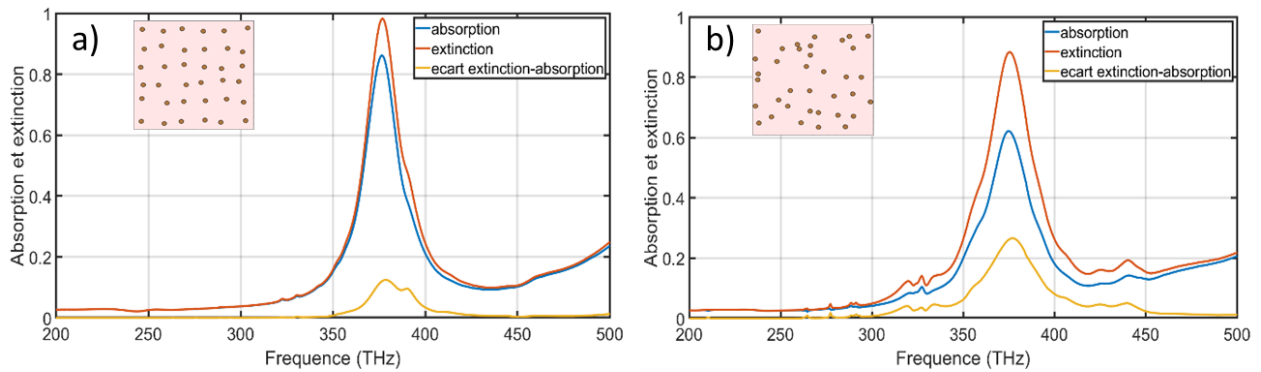


Figure 54 Extinction et absorption pour $p=520 \text{ nm}$ et $\sigma/p=$ a) 0,1 et b) 0,4

Nous pouvons voir qu'il existe dans les distributions désordonnées un écart significatif entre E et A, en particulier autour de la résonance. Loin de la résonance, les deux quantités redeviennent égales entre elles. On voit d'autre part que le niveau de désordre a une influence sur l'écart entre extinction et absorption. Plus la valeur de σ/p augmente, plus l'écart entre E et A est important à la résonance, si l'on compare les *Figure 53a)* et *b)* et les *Figure 54a)* et *b)*. On voit également en fonction de la densité des piliers, que l'écart entre E et A est légèrement plus faible pour la faible densité et pour de faibles valeurs de désordre ($\sigma/p=0,1$) comparé à la même quantité de désordre dans la distribution dense (*Figure 53a)* et *Figure 54a)*), où le maximum de l'écart est proche de 0,1, alors que pour la densité d'environ 50% (période p initiale de 158 nm), le maximum se situe autour de 0,2. Pour les valeurs plus importantes de désordre, l'écart maximal autour de la résonance est similaire pour les deux densités : on passe d'un écart maximal d'environ 0,25 pour la faible densité (*Figure 54b)*), à 0,3 pour la forte densité (*Figure 53b)*).

Physiquement, la différence entre extinction et absorption correspond à la part de la puissance rayonnée dans les directions non spéculaires. On peut qualifier de « diffusion » cette partie de la réflexion par la MS. Cette étude révèle d'abord qu'à mesure qu'on introduit du désordre dans la position des piliers résonants, la puissance diffusée augmente : elle est nulle pour les distributions périodiques et atteint autour de 30% pour les forts désordres ($\sigma/p=0,4$) quelle que soit la densité. Cette observation s'explique par le facteur de structure : comme nous l'avons vu au paragraphe II33, plus le paramètre σ/p augmente, plus le facteur de structure augmente dans notre domaine de vecteur d'onde d'intérêt. La légère augmentation du facteur de structure pour les distributions denses en fonction de σ/p (voir *Figure 41*) explique la faible variation du niveau de diffusion lorsqu'on augmente σ/p . En effet, le facteur de structure en cas de densités importantes a tendance à diminuer, en raison des déplacements limités des piliers par rapport à leur position initiale. Cependant, la densité des diffuseurs est elle aussi augmentée, ce qui peut expliquer les niveaux de diffusion supérieurs pour les distributions denses malgré une régularité plus importante de leur position. En revanche, l'augmentation du maximum de diffusion est plus sensible à l'augmentation de σ/p pour les distributions peu denses (voir les *Figure 54a)* et *b)*), ce qui rejoint l'augmentation du facteur de structure en fonction de σ/p (voir *Figure 37*). Enfin, on remarque que le niveau de diffusion suit la même évolution que le niveau d'absorption. Cela peut se comprendre

de la façon suivante : lorsque l'extinction augmente, la quantité de champ EM qui interagit avec la MS augmente. Une partie de ce champ est absorbé, et une partie est rayonné, ce qui augmente la quantité de champ diffusé.

En plus de la comptabilisation de tous les modes propagatifs, il importe également de choisir la position du port de Floquet (PF) avec soin afin qu'il ne soit pas excité en réflexion par des modes de Floquet évanescents qui n'auraient pas subi une atténuation assez forte pour que leur contribution au calcul du coefficient de réflexion soit effectivement négligeable. En général, une règle employée est que le port de Floquet doit être éloigné des éléments de la structure d'une distance z égale à une fraction de la longueur d'onde $\lambda/4$ de l'excitation dans le vide. C'est cette condition qui est retenue par défaut dans CST. Dans notre cas, pour la longueur d'onde de 800 nm, cela correspond à une distance $z=200$ nm. Ici, nous calculons dans nos simulations l'absorption en ne considérant que les modes de Floquet propagatifs à la fréquence maximale de la simulation (typiquement, 500 THz). Or, les modes de Floquet, comme les modes se propageant dans un guide d'ondes, possèdent une fréquence de coupure, à partir de laquelle ils deviennent propagatifs, et en dessous de laquelle ils sont évanescents. Il existe donc, dans une plage de fréquence de simulation donnée, un certain nombre de modes qui possèdent une fréquence de coupure à l'intérieur de la bande de simulation. A titre d'exemple, il y a 26 modes propagatifs à la fréquence 200 THz dans un domaine de $3 \times 3 \mu\text{m}^2$, et 178 modes propagatifs à 500 THz. Les modes dont la fréquence de coupure se trouve dans la bande de simulation doivent être considérés pour le calcul des paramètres S, mais ils doivent être suffisamment atténués en dessous de leur fréquence de coupure pour évaluer correctement leur paramètre S associé. Or, un examen du minimum des coefficients d'atténuation α_i des 178 modes à différentes fréquences permet de remarquer qu'il est en général de l'ordre de $\alpha_i \sim 10^{-6} \text{ m}^{-1}$. Pour un port de Floquet à $h=200$ nm de la structure et en supposant que l'on est dans le cas le plus défavorable d'une propagation à la verticale, le mode sera atténué d'un coefficient $e^{-\alpha_i h} \sim e^{-0,2} \sim 0,8$, ce qui n'est pas suffisant. La *Figure 55* montre le calcul du coefficient d'absorption et d'extinction pour un port de Floquet à $h=\lambda/4=214$ nm, $h=1 \mu\text{m}$ et $h=1,5 \mu\text{m}$ au-dessus de la structure pour $p=158$ nm, $\sigma/p=0,4$. Il est à noter que la longueur d'onde λ est calculée à la fréquence centrale de simulation $f_c = 350$ THz, d'où $h=214$ nm.

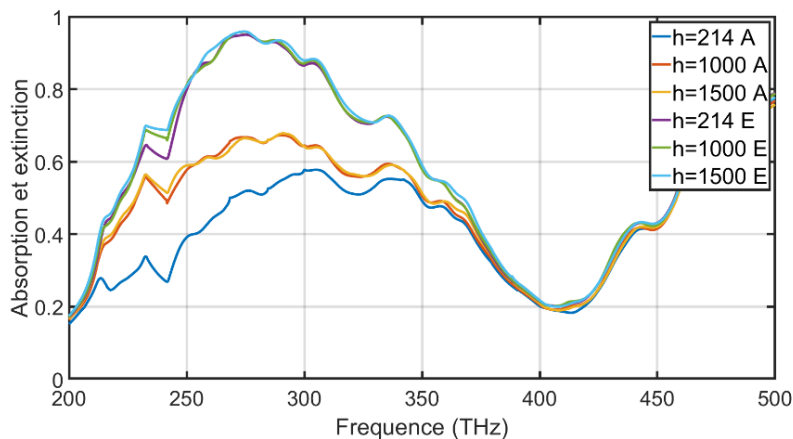


Figure 55 Absorption et extinction pour $p=158$ nm $\sigma/p=0,4$ en fonction de la position verticale du PF

Nous constatons que le calcul de l'extinction n'est presque pas affecté par le déplacement du PF (les courbes d'extinction bleu ciel, verte et violette dont la légende se finit par un « E » sont presque superposées), car il est uniquement calculé à partir des paramètres S des modes fondamentaux non atténués. En revanche, le coefficient d'absorption est fortement affecté par la position du PF. La règle par défaut de positionnement vertical du PF n'est pas suffisante comme anticipé : le champ confiné autour de la MS n'est pas localisé à l'échelle de quelques centaines de nm transversalement par rapport au plan de la MS, mais plutôt de l'ordre du μm . En effet, on voit que les modes sont complètement atténués à partir d'un éloignement vertical de $1\ \mu\text{m}$ environ, car l'absorption est pratiquement identique pour $h=1\ \mu\text{m}$ et $1,5\ \mu\text{m}$ (courbes rouge et jaune). Dans les simulations, nous prendrons soin de positionner le PF à $1\ \mu\text{m}$. Éloigner trop le PF augmente le volume de simulation et allonge ainsi les temps de calcul.

Dans la suite, nous nous intéresserons plutôt au calcul de l'absorption de notre MS, car compte tenu de notre objectif, à savoir dimensionner une structure qui permet de réaliser un couplage entre une onde EM et une vibration acoustique, le champ rayonné hors de la MS constitue une perte vis-à-vis du couplage, que ce rayonnement soit dans une direction spéculaire ou non. Il est tout de même utile d'étudier le comportement de l'extinction, car suivant l'application cette quantité peut s'avérer plus pertinente, notamment pour la furtivité radar comme rappelé plus haut.

II43 Effet du désordre de position à densité constante

Nous allons désormais nous intéresser au comportement du mode MIM lorsque l'on introduit du désordre dans la géométrie de la cellule périodique optimale de période $p=520\ \text{nm}$ dimensionnée précédemment. Pour les analyses, nous nommerons bande d'absorption, la largeur à mi-hauteur de la courbe d'absorption.

Au cours du procédé, nous travaillons à densité de piliers constante au sein de la super-cellule puisque les piliers ne sont pas autorisés à se recouvrir. Ainsi, nous allons tout d'abord étudier le comportement spectral de l'absorption de la MS pour la densité d'environ 5% correspondant à la densité optimale du réseau périodique. La *Figure 56* montre l'absorption pour des valeurs de désordre σ/p variant de 0 à 0,4 puis 1, ainsi que pour une distribution générée comme au paragraphe II31, notée $\sigma/p=\infty$ en légende par commodité de notation. L'image insérée en haut à gauche du graphique montre un exemple de MS simulée correspondant au cas $\sigma/p=0,2$.

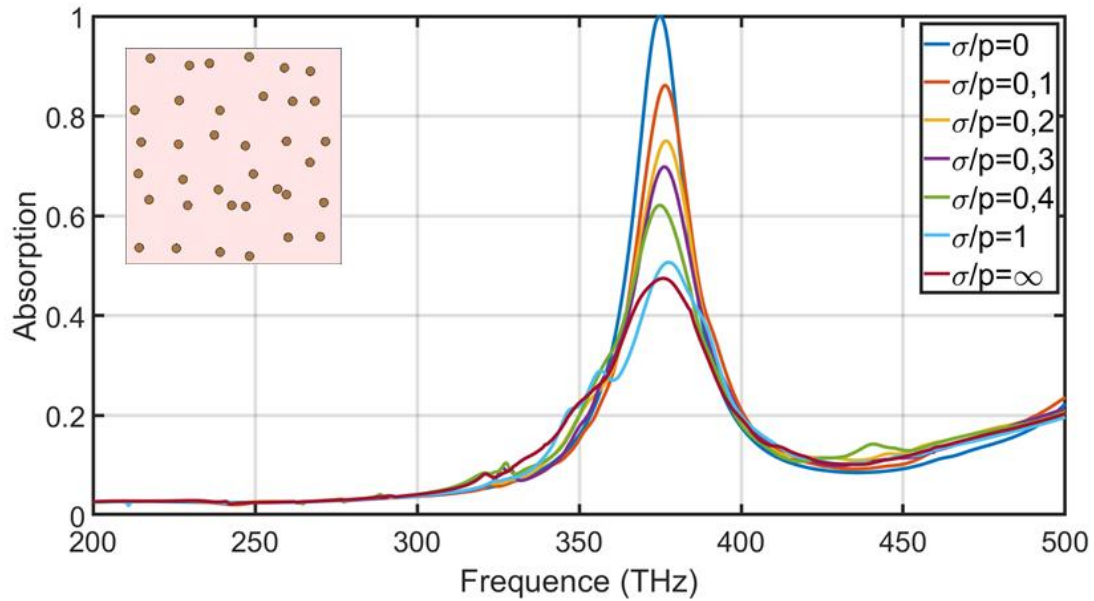


Figure 56 Absorption en fonction de la fréquence pour $p=520$ nm (densité = 5%) en fonction de σ/p

Il apparaît que l'augmentation du désordre de position pour la densité 5% diminue de manière monotone le maximum d'absorption, qui était unitaire dans le cas périodique, jusqu'à $A \sim 0,5$ pour un désordre de degré de liberté maximal ($\sigma/p = \infty$). En outre, l'introduction de désordre a un effet minime sur l'augmentation de la largeur de bande d'absorption, qui reste relativement constante quelle que soit la valeur de σ/p .

Nous calculons de plus l'absorption moyenne liée à la résonance MIM. Il s'agit de l'intégrale sous la courbe de l'absorption pour le pic MIM défini précédemment, résonant autour de 375 THz, divisée par la largeur de la bande considérée. Nous pouvons remarquer une légère remontée des courbes d'absorption à partir de 425 THz environ. Cette remontée semble liée aux propriétés intrinsèques de l'or, dont la partie imaginaire de la permittivité augmente à partir de ces fréquences comme nous l'avons constaté au chapitre I (voir *Figure 10* du paragraphe I312). Ce comportement est lié à l'absorption des photons par les électrons liés aux atomes d'or, dont l'énergie les excite vers un état non occupé de plus haute énergie. On appelle ce phénomène les transitions inter-bandes de l'or [93]. Ainsi, au-delà des fréquences de transition inter-bandes, il n'est plus rigoureux de décrire les propriétés électroniques de l'or par le mouvement d'un plasma d'électrons libres. Cependant, ce phénomène d'absorption ne nous intéresse pas ici car il n'est pas lié au mécanisme de résonance MIM que nous étudions.

Nous allons donc calculer l'intégrale de la courbe d'absorption sur le domaine [200 ; 425] THz, c'est-à-dire sur un domaine où le phénomène d'absorption inter-bandes à haute fréquence n'a pas encore d'effet sur le niveau d'absorption de la MS. Le résultat sera également discuté dans la suite. De plus, on remarque que l'introduction de désordre ne fait pas disparaître le pic de résonance, correspondant au cas périodique, qui reste très visible sur toutes les courbes. Enfin, nous voyons que le comportement d'absorption de la MS de paramètre $\sigma/p = \infty$, est approché par celui des MS à partir d'un paramètre de

perturbation $\sigma/p=1$. Nous avons vu en effet que le facteur de structure sur le domaine de module du vecteur d'onde qui nous intéresse était très proche pour les deux distributions.

Ce comportement paraît logique puisque l'on a vu que le désordre favorisait le champ diffusé par la MS, qui est un mécanisme de pertes pour l'absorption. En résumé, l'introduction de désordre semble peu judicieuse pour une MS de densité proche de celle du réseau périodique optimal.

En revanche, l'introduction de désordre permet de relaxer la contrainte sur la période optimale qui guidait la conception des MS périodiques. Comme on l'a vu au paragraphe I321, la diminution de la période modifie la condition de couplage critique [34]. Ainsi, pour une période plus faible que la période optimale, il existera une désadaptation d'impédance avec l'espace libre et donc une réflexion dans la direction spéculaire. Ce mécanisme peut être compensé par l'introduction d'un désordre de position. Nous allons donc par la suite simuler le comportement de la MS en fonction du désordre, pour des densités de piliers plus importantes.

On simule ainsi des distributions de densités 10%, 15%, 30% et 50%, qui correspondent à des périodes initiales du réseau correspondant de $p=353, 288, 204$ et 158 nm respectivement. Comme le domaine de simulation est de taille constante, le nombre de piliers par distribution vaut respectivement 81, 121, 225 et 400.

Les figures suivantes montrent les courbes spectrales d'absorption pour les densités mentionnées ci-dessus pour différentes valeurs de désordre. Pour chaque graphe, la structure insérée correspond à un facteur $\sigma/p=0,2$.

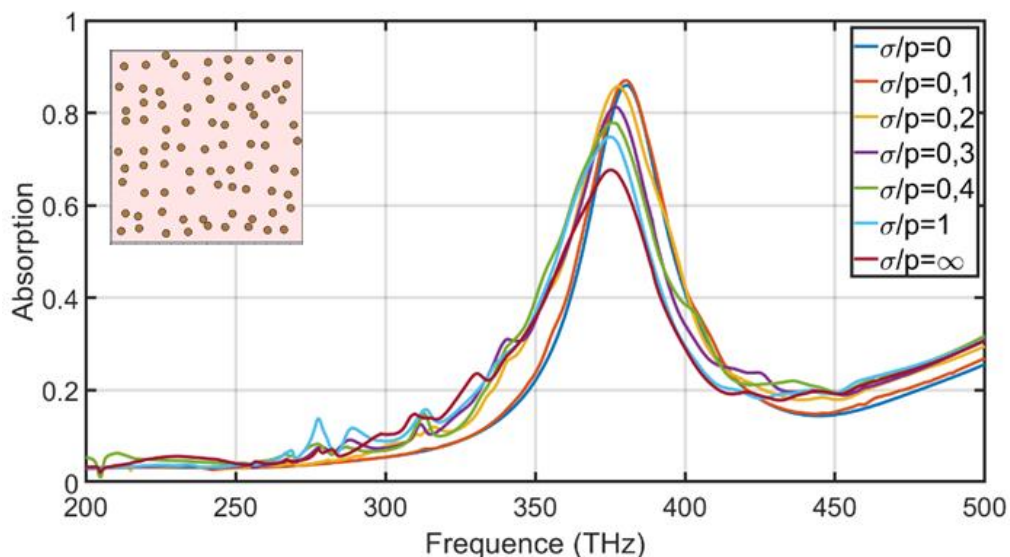


Figure 57 Absorption en fonction de la fréquence pour $p=353$ nm (densité = 10%) en fonction de σ/p

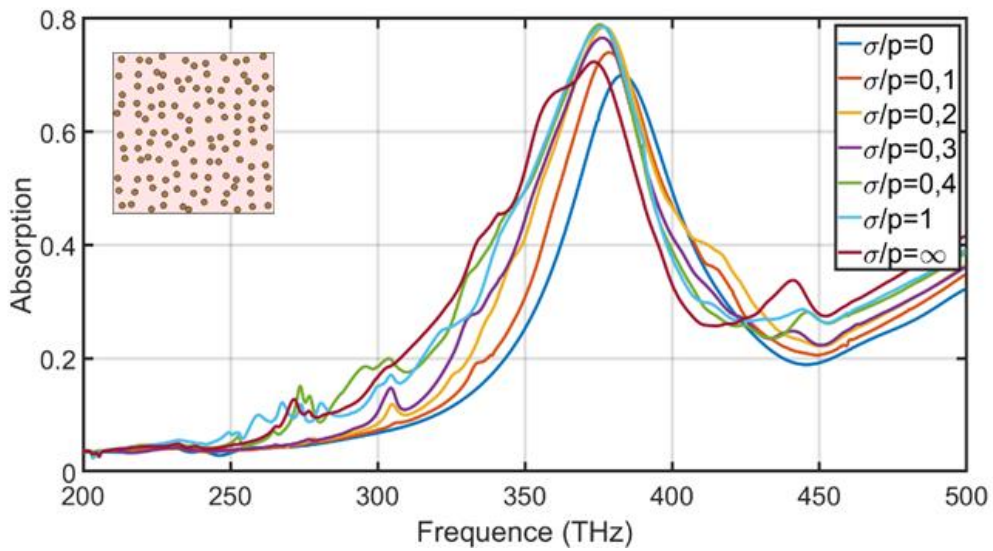


Figure 58 Absorption en fonction de la fréquence pour $p=288$ nm (densité = 15%) en fonction de σ/p

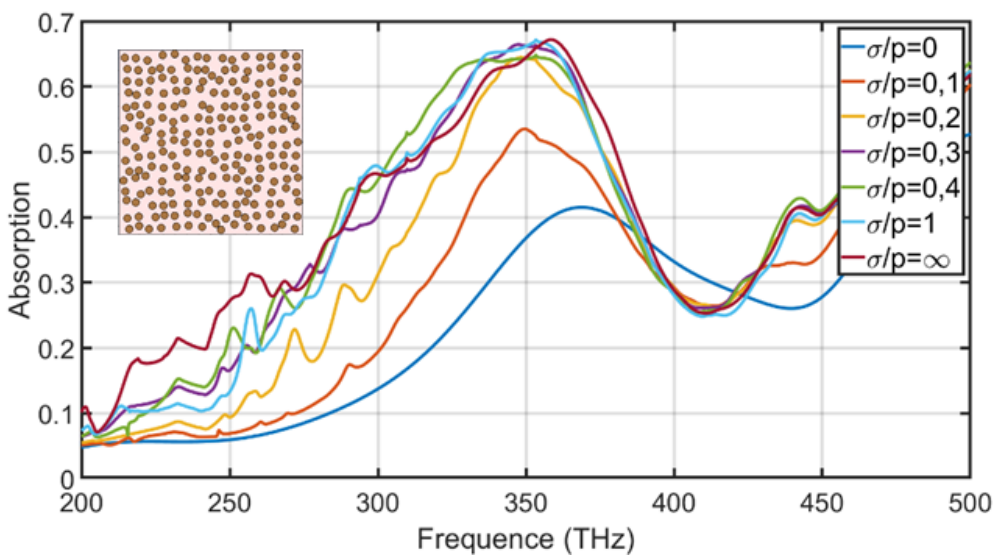


Figure 59 Absorption en fonction de la fréquence pour $p=204$ nm (densité = 30%) en fonction de σ/p

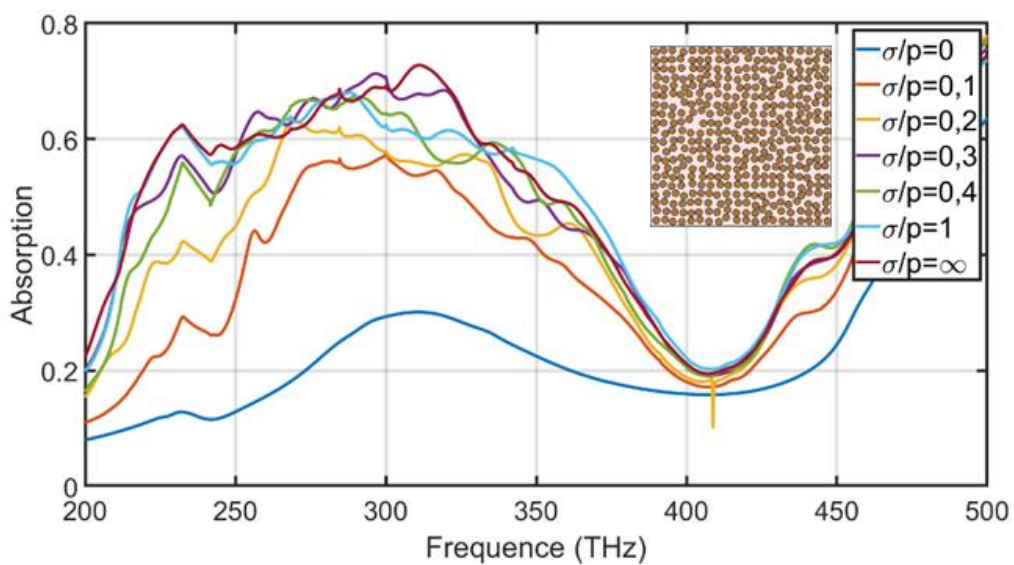


Figure 60 Absorption en fonction de la fréquence pour $p=158$ nm (densité = 50%) en fonction de σ/p

Pour la densité de 10%, nous voyons que le maximum d'absorption est atteint dans le cas périodique, et qu'il a tendance à diminuer avec l'augmentation de désordre, comme pour la densité de 5%. Nous observons également une légère augmentation de la largeur de bande lorsque l'on augmente le désordre. Le pic de résonance reste très marqué ; les observations restent très similaires au cas précédent. Cependant, on peut voir que pour cette densité, le niveau de désordre a un rôle moins important sur le maximum d'absorption que pour la densité de 5%. Enfin, nous calculons l'absorption moyenne sur le domaine [200 ; 425] THz où seul le mécanisme MIM est responsable de l'absorption. Les résultats seront présentés sur un graphique bilan en fonction de la densité et du niveau de désordre.

En revanche, on commence à observer de nettes différences pour les densités supérieures. Pour $p=288$ nm (densité 15%), l'augmentation du désordre modifie peu le maximum d'absorption et sa fréquence, qui reste autour de 375 THz. En revanche, on commence à observer une augmentation non négligeable de l'absorption vers les basses fréquences dans le domaine [275 ; 375] THz environ, pour les fréquences légèrement inférieures à la fréquence de résonance. Nous calculons la largeur de bande sur le domaine [200 ; 425] THz pour éviter de prendre en compte la remontée de l'absorption due au phénomène d'absorption inter-bandes, dont la contribution dans notre bande d'intérêt augmente avec la densité. En effet, l'absorption inter-bandes est liée aux propriétés électroniques de l'or, et ainsi il est logique que l'absorption augmente avec l'augmentation de la quantité d'or dans la structure. Nous calculons également l'intégrale de l'absorption sur le domaine [200 ; 425] THz. En outre, le pic d'absorption autour de 375 THz reste bien visible. Enfin, on peut observer un pic d'absorption peu intense vers 440 THz qui apparaît pour les valeurs élevées de σ/p . Nous caractériserons la nature de ce mode dans la suite. Ce mode est en dehors de la fenêtre spectrale du calcul de la largeur de bande et de l'absorption moyenne du mécanisme MIM, son influence sur ces quantités moyennées est donc négligeable.

Cette densité de 15% correspond à la densité frontière entre les deux régimes de comportement des MS en fonction de la quantité de désordre. En effet, si l'on augmente encore la densité de piliers, l'ajout de désordre entraîne une augmentation à la fois du maximum d'absorption et de la largeur de bande d'absorption (voir *Figure 59* et *Figure 60*). Ceci s'explique par le fait qu'un ensemble de NP plasmoniques couplées possède des fréquences de résonance différentes de la fréquence de résonance individuelle de la NP. Expérimentalement, ce phénomène a été observé dans [65], et est expliqué théoriquement par le phénomène d'hybridation des modes [69], dont nous avons discuté au chapitre I. L'augmentation du désordre entraîne localement la formation d'ensembles de NP situées à des distances très faibles, comme on peut le voir sur les exemples de distributions représentées sur les figures en encart. Ceci explique le décalage de la zone d'absorption vers les basses fréquences lorsque la densité est plus forte. En conséquence, dans le cas des densités supérieures à 30%, les résonances locales MIM se produisant à des fréquences différentes se combinent pour former un plateau d'absorption. Enfin, pour les densités 30 et 50%, on observe toujours le pic d'absorption peu intense vers 440 THz.

Pour la densité de 30% (période p de 204 nm), il est difficile de quantifier la largeur de bande et l'absorption totale de la MS car les modes MIM hybrides se superposent à l'effet de transition inter

bande déjà mentionné, qui devient plus prononcé lorsque la densité de métal augmente. Ces deux effets contribuent ensemble à l'absorption par la MS, si bien qu'il est difficile de mesurer la contribution des modes MIM hybrides à l'absorption totale et à la largeur de bande correspondante. En revanche, le décalage vers les basses fréquences de la fréquence centrale d'absorption pour le cas de la densité de 50% permet d'éloigner spectralement les deux phénomènes. Dans ce cas, on peut calculer la largeur de bande et l'intégrale de l'absorption sur le domaine [200 ; 400] THz. On remarque que l'absorption totale sera tout de même un peu sous-estimée par ce calcul car l'absorption liée aux modes MIM hybrides n'est pas encore revenue à 0 à la fréquence de 400 THz, fréquence pour laquelle les transitions inter bandes de l'or commencent à être significatives pour ces densités de piliers.

En guise de bilan, on représente en *Figure 61* l'absorption moyenne, l'absorption maximale et la largeur de bande normalisée sur le domaine [200 ; 400] ou [200 ; 425] THz suivant les cas, en fonction du niveau de désordre σ/p et pour chaque densité. La densité de 30% ne figure pas sur les graphiques a) et c) par difficulté de séparer l'absorption MIM de l'absorption inter-bandes, comme discuté plus haut. En revanche, l'absorption maximale, qui a lieu essentiellement en milieu de bande d'absorption, n'est pas significativement affectée par le phénomène inter-bandes et la valeur pour la densité de 30% est donc montrée en *Figure 61b*). Les données pour $\sigma/p=\infty$ sont représentées par une étoile en bord de graphique.

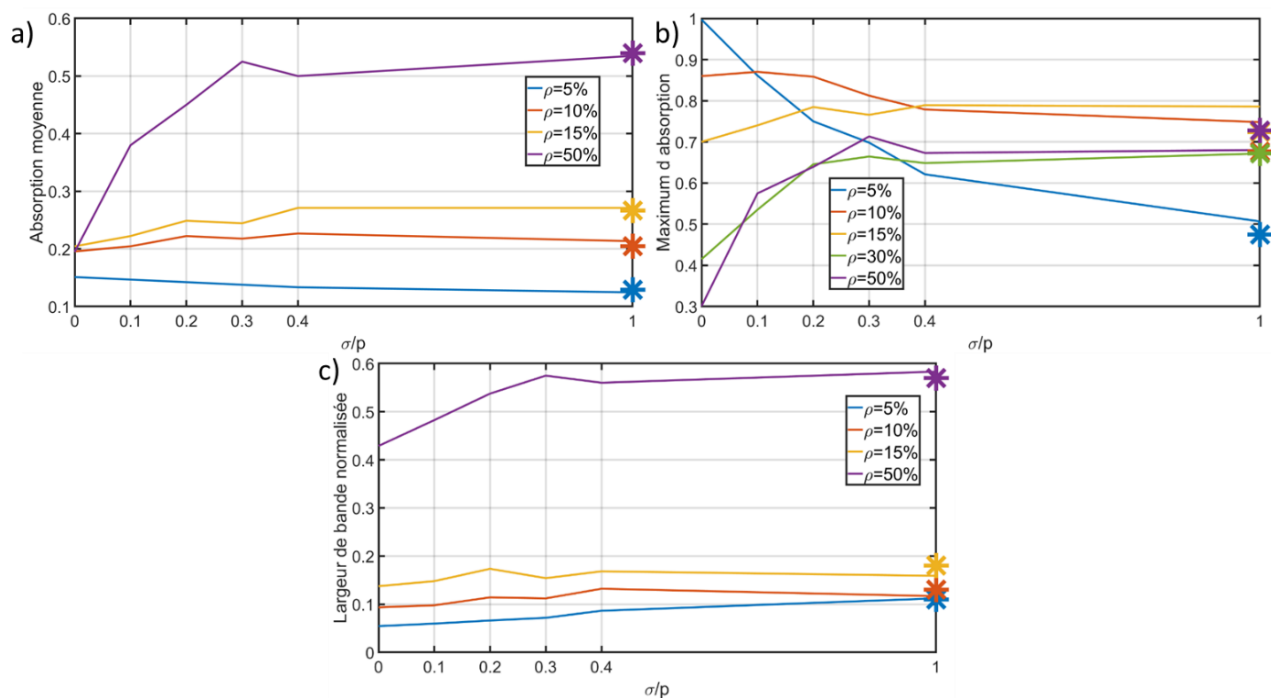


Figure 61 a) Absorption moyenne b) Maximum d'absorption et c) Largeur de bande normalisée en fonction de σ/p pour différentes densités

Cette figure révèle le rôle du désordre pour chaque densité sur trois grandeurs caractéristiques du comportement d'absorption des MS. Tout d'abord, on peut remarquer sur la *Figure 61a*) que l'augmentation du désordre permet d'augmenter l'absorption moyenne de manière significative pour les distributions les plus denses uniquement. Ceci est vrai pour la densité de 50% et même si les données ne peuvent pas être estimées rigoureusement pour la densité de 30%, l'examen de la *Figure 59* nous

permet d'affirmer avec certitude que l'introduction de désordre augmente aussi l'absorption moyenne dans ce cas.

Pour les distributions de densité 5%, l'augmentation du désordre diminue au contraire l'absorption moyenne (la condition de couplage critique qui est respectée pour $\sigma/p=0$ est perturbée). Pour les densités intermédiaires de 10 et 15% enfin, le désordre permet de réaliser une situation de compromis dans la mesure où d'une part le maximum d'absorption reste assez élevé quel que soit le niveau de désordre, et d'autre part la largeur de bande d'absorption augmente. Il apparaît également pour la densité de 15% que la valeur maximale d'absorption est atteinte pour un désordre « intermédiaire » $\sigma/p=0,4$, bien que pratiquement constante pour $0,2 \leq \sigma/p \leq 1$. Enfin, l'introduction de désordre est judicieuse dans le cas de la densité de 50% à la fois en termes de maximum et de largeur d'absorption, et d'absorption moyenne. En effet, pour un paramètre de désordre $\sigma/p=\infty$, on obtient une absorption dont le maximum est supérieur à 0,7, tout en présentant une absorption moyenne de plus de 0,5 sur une largeur spectrale normalisée de près de 0,6. L'introduction du désordre, pour les densités importantes, entraîne l'apparition de modes qui absorbent efficacement le champ incident. En effet, le désordre de position permet de modifier les conditions de couplage, et ainsi d'augmenter l'absorption. Nous reviendrons sur cet aspect dans la suite lorsque nous nous intéresserons aux distributions désordonnées en une dimension. Enfin, la *Figure 62* montre la diffusion moyenne par nos structures, dans les directions non spéculaires, notée D , en fonction du désordre et pour chaque densité. Celle-ci est calculée par l'expression (avec les notations introduites au paragraphe II.4.2 :

$$D = \sum_{i=3}^N |S_{11(i)}|^2 \quad (38)$$

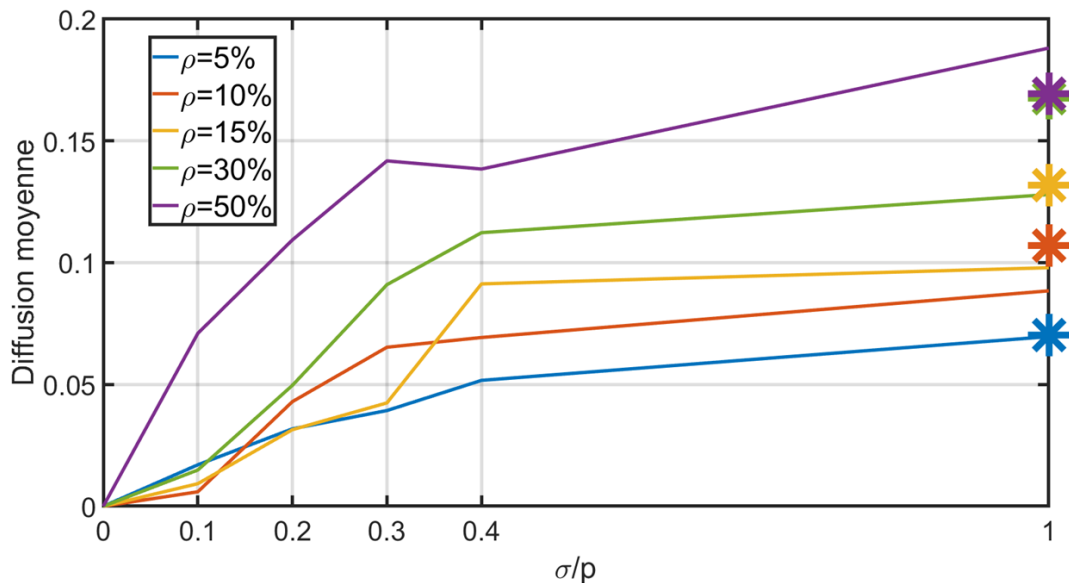


Figure 62 Diffusion moyenne en fonction de σ/p pour différentes densités

On voit que la diffusion augmente avec le désordre, quelle que soit la valeur de la densité. Ainsi, l'introduction de désordre révèle un compromis : d'un côté, l'augmentation du désordre permet de modifier les conditions de couplage et donc de faire apparaître des modes qui absorbent potentiellement plus efficacement que le mode MIM périodique, mais d'un autre côté, il faut faire une concession sur le niveau de diffusion, qui peut s'apparenter à un mécanisme de pertes.

C'est pour la densité de 50% que le désordre a un effet le plus intéressant car à la fois le maximum d'absorption et la moyenne d'absorption augmentent avec la quantité de désordre, elle va donc nous intéresser plus particulièrement. On remarque d'abord que pour cette densité, l'absorption pic et moyenne sont maximales pour $\sigma/p = \infty$. En second lieu, on peut remarquer deux choses sur les propriétés d'absorption : d'une part, tant l'absorption moyenne que maximale sont atteintes dès un désordre σ/p de 0,3. Cet effet s'explique par le fait que l'amplitude des déplacements possibles pour une NP diminue avec l'augmentation de la densité, ce qu'on peut mesurer par l'écart type des déplacements réellement obtenus après le processus MCMC (qu'on a appelé σ empirique précédemment, noté σ_{emp}). Cette valeur est assez différente de l'écart type de la loi visée. La *Figure 63* représente l'écart type empirique σ_{emp}/p de distributions de $N=100 \times 100$ piliers et de densité 15, 30 et 50% en fonction de l'écart type de la loi cible σ/p .

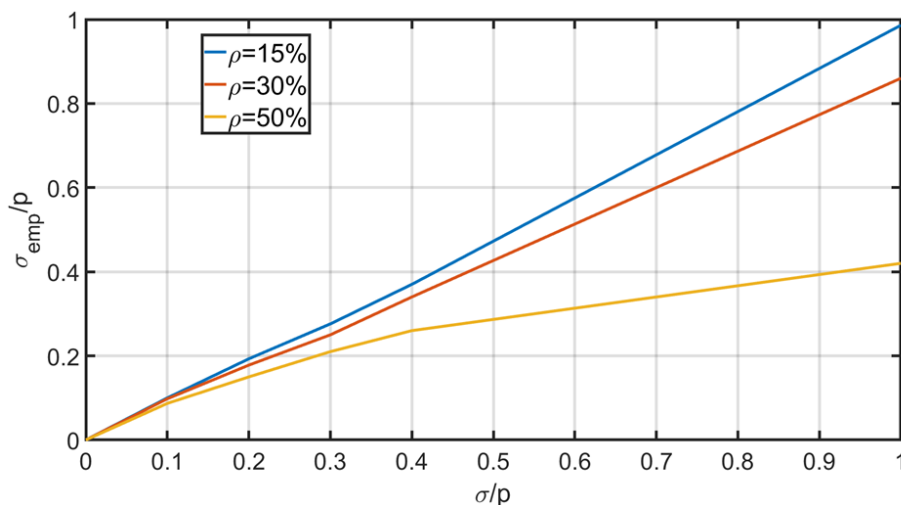


Figure 63 Ecart type empirique en fonction de l'écart type de la loi cible pour les fortes densités

La déviation est d'autant plus grande que la valeur σ/p est élevée. Nous pouvons remarquer que dans le cas de la densité de 15%, on a $\sigma/p \sim \sigma_{emp}/p$. Cependant, ce n'est plus vrai pour les densités supérieures de 30 et de 50%. Pour ces densités, on a clairement $\sigma/p > \sigma_{emp}/p$ et ceci est d'autant plus vrai à mesure que la valeur σ/p augmente.

D'un point de vue physique, plus la période diminue, plus les couplages sont forts entre les résonateurs pour une valeur σ/p donnée. A titre d'exemple, pour une période de 158 nm, la distance entre chaque pilier est de 158-126~30 nm, ce qui signifie que le couplage se fait désormais par les composantes évanescentes de champ proche car cette distance est faible comparée à la longueur d'onde d'excitation où se produit la résonance, soit 970 nm environ (310 THz en fréquence). Une légère modification des

distances entre résonateurs peut donc modifier substantiellement les conditions de couplage. Ceci explique la forte dépendance de l'absorption maximale et moyenne lorsque σ/p passe de 0 à 0,1 pour les fortes densités.

Enfin, il est à noter qu'il est difficile d'obtenir une absorption unitaire en présence de désordre, car chaque mode de résonance de la structure est différent. On le voit sur la *Figure 64*, qui représente une carte du module du champ électrique E pour une onde incidente polarisée selon y , pour une distribution de densité 50% et un niveau de désordre $\sigma/p=1$ aux fréquences 232 et 288 THz, qui sont des fréquences correspondant à deux maxima locaux de la courbe d'absorption. La répartition du champ EM dans la MS est beaucoup plus aléatoire et elle varie beaucoup en fonction de la fréquence, ce qui suggère que chaque configuration peut contenir des résonances locales à une fréquence spécifique.

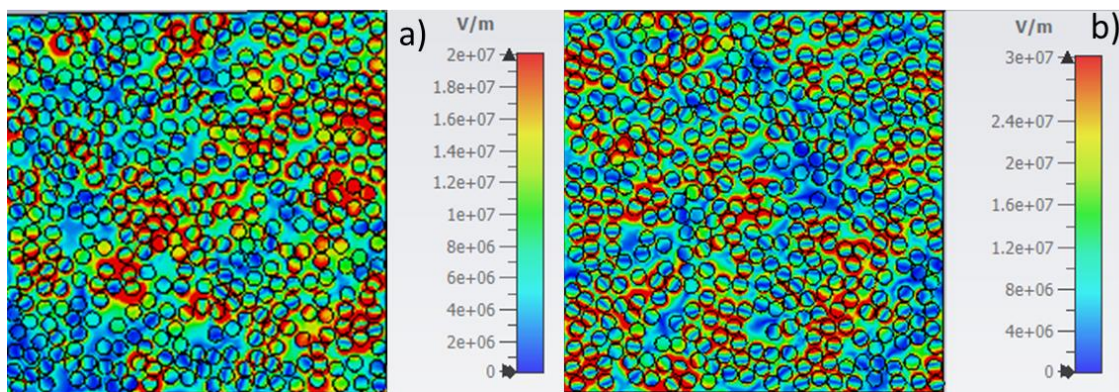


Figure 64 Carte de champ E en vue de dessus dans une MS de paramètres $p=158$ nm et $\sigma/p=1$ à la fréquence a) 232 THz et b) 288 THz pour une onde polarisée selon y

Enfin, on remarque sur la *Figure 61c)* que le désordre a une influence différente sur la largeur de bande d'absorption. En effet, la largeur de bande est surtout liée à la densité : lorsque la densité augmente, la largeur de bande augmente aussi. Pour comprendre d'où provient l'augmentation de la largeur de bande lorsque la densité augmente, nous avons étudié le comportement d'absorption d'une distribution périodique dans laquelle la cellule élémentaire est composée d'un couple de piliers (ou dimère), en faisant varier la distance bord à bord et l'orientation des piliers l'un par rapport à l'autre. La structure étudiée est représentée en *Figure 65*.

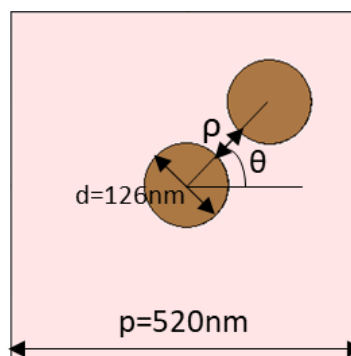


Figure 65 Géométrie étudiée, de paramètres $p=520$ nm, $d=126$ nm, pour des valeurs ρ et θ variables

Nous allons faire varier la distance bord à bord ρ de 1 à 50 nm, ainsi que l'orientation θ par rapport à l'horizontale. La structure est excitée en polarisation verticale, soit dans la direction $\theta=90^\circ$. Les conditions aux bords sont périodiques. La *Figure 66* montre l'absorption par la structure lorsque les piliers sont orthogonaux ou alignés dans la direction de la polarisation incidente et que la distance ρ varie.

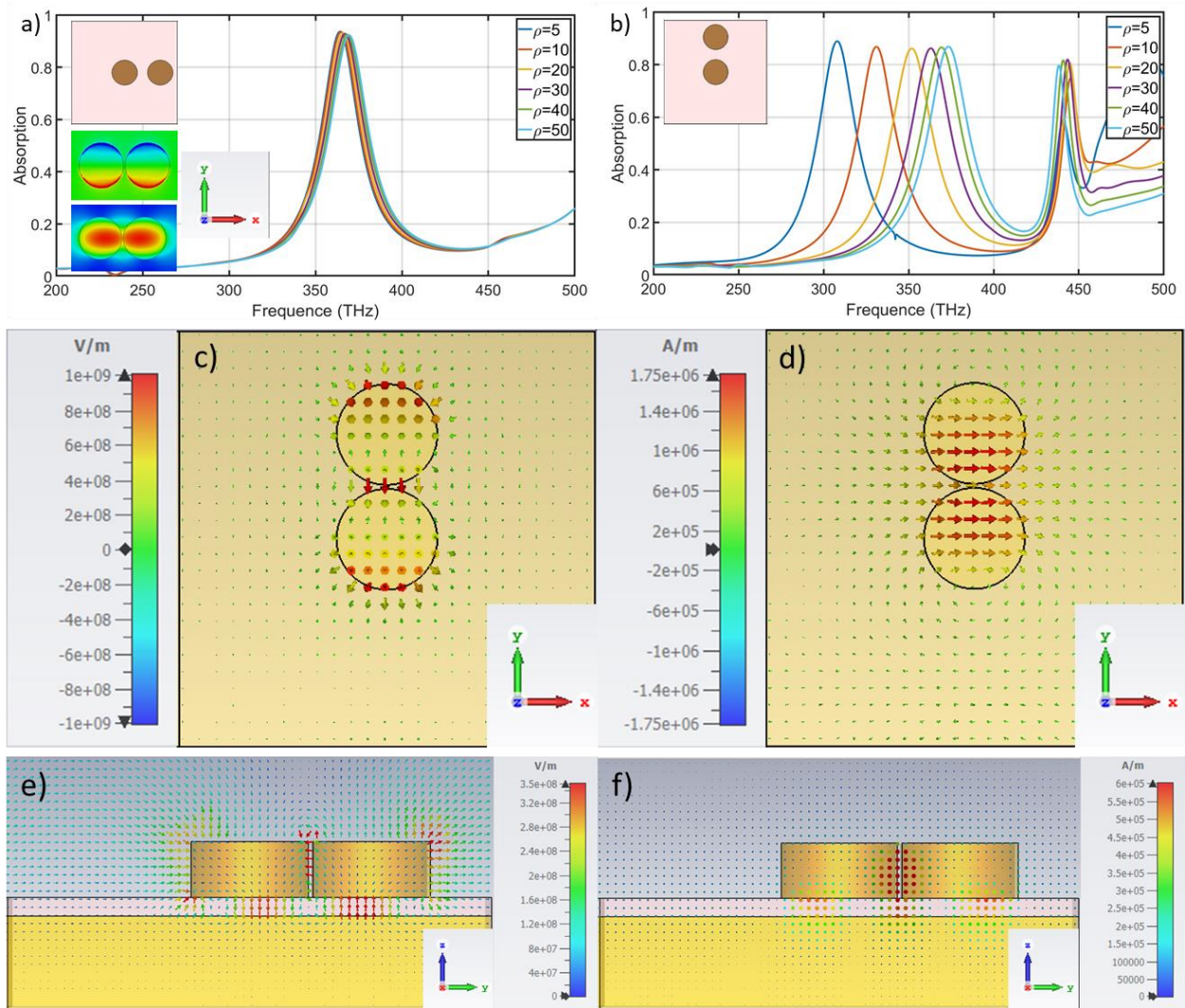


Figure 66 Absorption en fonction de la distance bord à bord ρ a) pour $\theta=0^\circ$ (cf encart avec $\rho=50$ nm) et b) pour $\theta=90^\circ$ (cf encart avec $\rho=50$ nm). L'encart montre aussi les cartes de champ de la composante E_z du champ \mathbf{E} et H_x du champ \mathbf{H} à la fréquence 364 THz pour un paramètre $\rho=5$ nm. Le système de coordonnées est indiqué sur la figure. Cartes de champ en coupe horizontale dans le plan $z=120$ nm avec $\rho=5$ nm à 307 THz c) champ \mathbf{E} et d) champ \mathbf{H} et cartes de champ en coupe verticale dans le plan $x=0$ à 440 THz e) champ \mathbf{E} et f) champ \mathbf{H}

On remarque que lorsque les piliers sont orthogonaux à la polarisation, seul le mode MIM identifié au paragraphe II.4.1 (voir *Figure 47*, *Figure 48* et *Figure 49*) est excité dans la structure, comme le montrent les encarts de la *Figure 66a*) (à comparer aux *Figure 47b*) et *Figure 48b*)), à une fréquence légèrement décalée vers les basses fréquences par rapport à la configuration périodique $p=520$ nm de piliers seuls. En outre, sa position spectrale est très peu dépendante de la distance entre les piliers. Autrement dit, il y a peu de couplage entre les deux résonateurs MIM du dimère. C'est très différent lorsque les piliers sont dans la direction de la polarisation. Dans ce cas, il existe deux modes d'absorption intense, dont les

cartes de champ \mathbf{E} et \mathbf{H} sont représentées en *Figure 66c), d), e) et f)* pour un paramètre $\rho=5$ nm, et aux fréquences du maximum d'absorption de chaque pic : 307 THz (c) et d)) et 440 THz (e) et f)). Le premier mode à 307 THz correspond au mode MIM précédent, comme le montrent les cartes de champ \mathbf{E} et \mathbf{H} . On remarque sur la *Figure 66b)* que ce mode évolue spectralement vers les basses fréquences à mesure que ρ diminue, en partant d'une fréquence de $f\sim 375$ THz lorsque $\rho=50$ nm. Ceci est la conséquence du couplage entre les deux résonateurs du dimère. On peut voir sur les cartes de champ que le champ \mathbf{E} est très intense dans l'espace de 5 nm entre les piliers (*Figure 66c)*), alors qu'en l'absence de résonateur proche, ce champ est le plus intense sur les bords. En conséquence, le maximum de champ \mathbf{H} n'est plus localisé au centre de chaque résonateur mais est décalé en direction de l'autre résonateur (*Figure 66d)*). D'autre part, les *Figure 66e) et f)* montrent un mode de résonance à 440 THz différent du mode MIM initial. On voit sur la *Figure 66e)* que le maximum du champ \mathbf{E} de ce mode n'est pas réparti dans le diélectrique au niveau des bords des piliers, mais plutôt au centre de ceux-ci : il s'agit donc d'un mode plasmonique issu du couplage entre les résonateurs MIM. Ainsi, la circulation du champ électrique \mathbf{E} s'effectue entre les deux MA, ce qui crée un champ magnétique \mathbf{H} dans l'espace inter piliers, sur toute la hauteur des piliers (*Figure 66f)*). La circulation du champ \mathbf{E} n'est pas possible si les piliers sont alignés horizontalement, ce qui explique pourquoi ce mode n'existe pas dans la situation $\theta=0^\circ$ même pour de faibles valeurs de ρ . Il existe aussi un champ magnétique moins intense sous les piliers. La position spectrale de ce mode n'est pas très dépendante de ρ . Nous pouvons qualifier ce mode de « mode interstitiel », compte tenu de la répartition du champ magnétique correspondante. C'est ce mode que l'on observe sur les simulations des réseaux désordonnés autour de la fréquence de 440 THz, ce qui explique pourquoi il apparaît pour de fortes densités, car il est lié à un couplage inter piliers comme le montrent les cartes de champ des *Figure 66e) et f)*. Voyons maintenant les courbes spectrales d'absorption lorsque les piliers sont orientés de 45° par rapport à la direction de polarisation.

Dans ce cas, on observe un mode supplémentaire par rapport au cas $\theta=90^\circ$, qui apparaît pour les faibles valeurs de ρ . Lorsque $\rho=50$ nm, on voit deux pics d'absorption, autour de 375 THz et 440 THz. Ce sont les mêmes modes que ceux identifiés précédemment pour l'orientation $\theta=90^\circ$: leurs cartes de champ sont montrées en *Figure 67b), c), d) et e)*. Les champs \mathbf{E} et \mathbf{H} du mode à 371 THz correspondent au mode MIM « habituel », les piliers sont polarisés dans le sens de la polarisation incidente. Le mode à 440 THz est un mode caractérisé par une répartition du champ \mathbf{E} en dehors des bords des piliers (voir *Figure 67d)*), si bien que la boucle de courant a lieu entre les piliers et ainsi le champ \mathbf{H} est plus intense dans la zone inter-piliers (voir *Figure 67e)*). C'est le même mécanisme que celui observé en *Figure 66f)*. En revanche, lorsque ρ diminue, on voit que le mode MIM initialement à 371 THz se scinde en deux modes différents. Cette hybridation se produit lorsque $\rho<20$ nm environ. A mesure que ρ diminue, les deux modes se séparent spectralement : le mode de plus haute fréquence est peu affecté par ρ et reste autour de 360 THz, tandis que le mode de plus basse fréquence est décalé de plus en plus vers les basses fréquences quand ρ diminue. On voit que la position spectrale de ce dernier mode est comparable à la

position du mode de plus basse fréquence observé pour $\theta=90^\circ$ à valeur équivalente de ρ , bien que son amplitude soit plus faible.

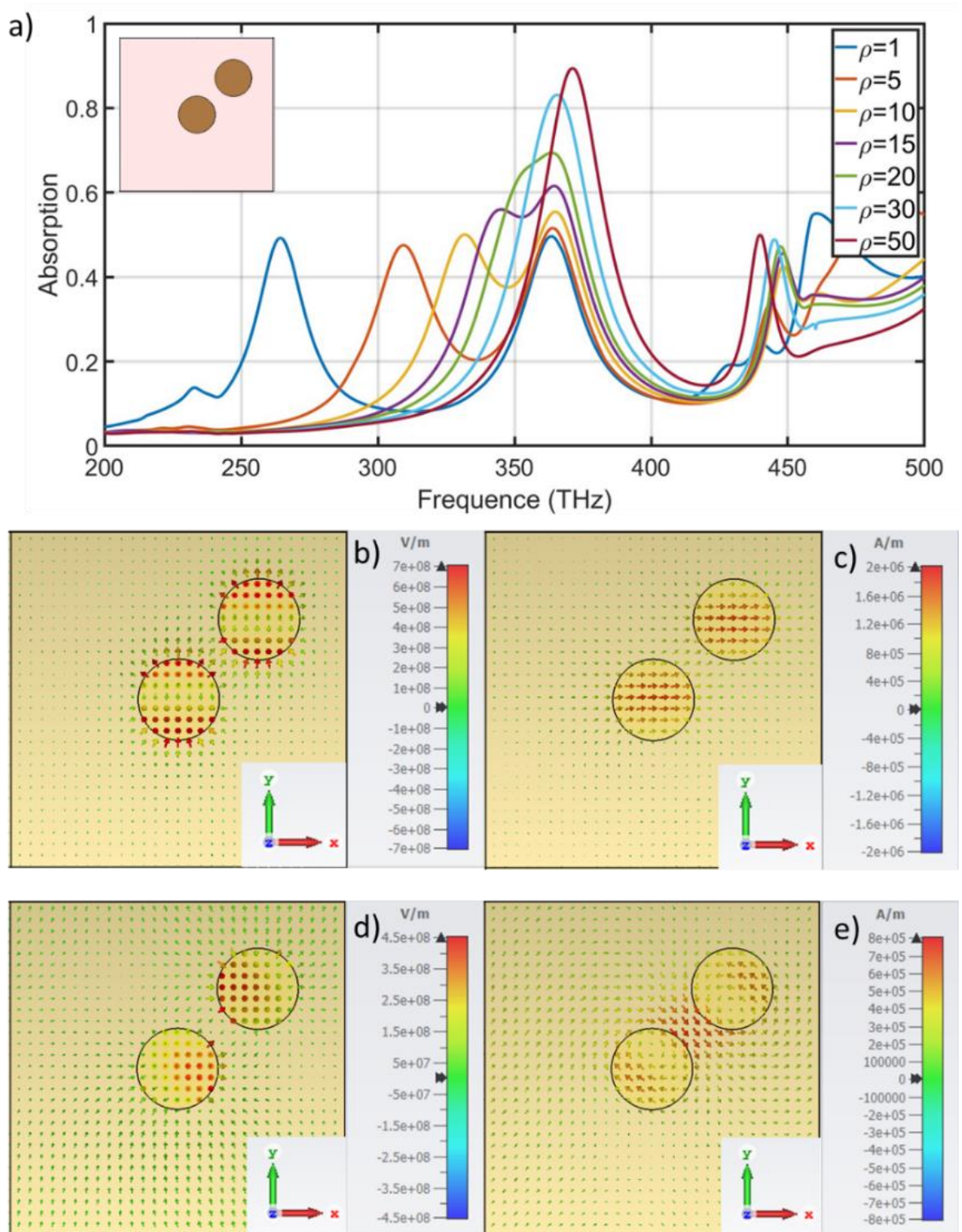


Figure 67 a) Absorption en fonction de la distance bord à bord ρ pour $\theta=45^\circ$ (cf encart avec $\rho=50$ nm) et cartes de champ en coupe horizontale dans le plan $z=120$ nm pour $\rho=50$ nm à $f=371$ THz b) champ E c) champ H et $f=440$ THz d) champ E e) champ H

La Figure 68 montre les cartes de champ des deux modes hybrides pour une distance ρ de 5 nm.

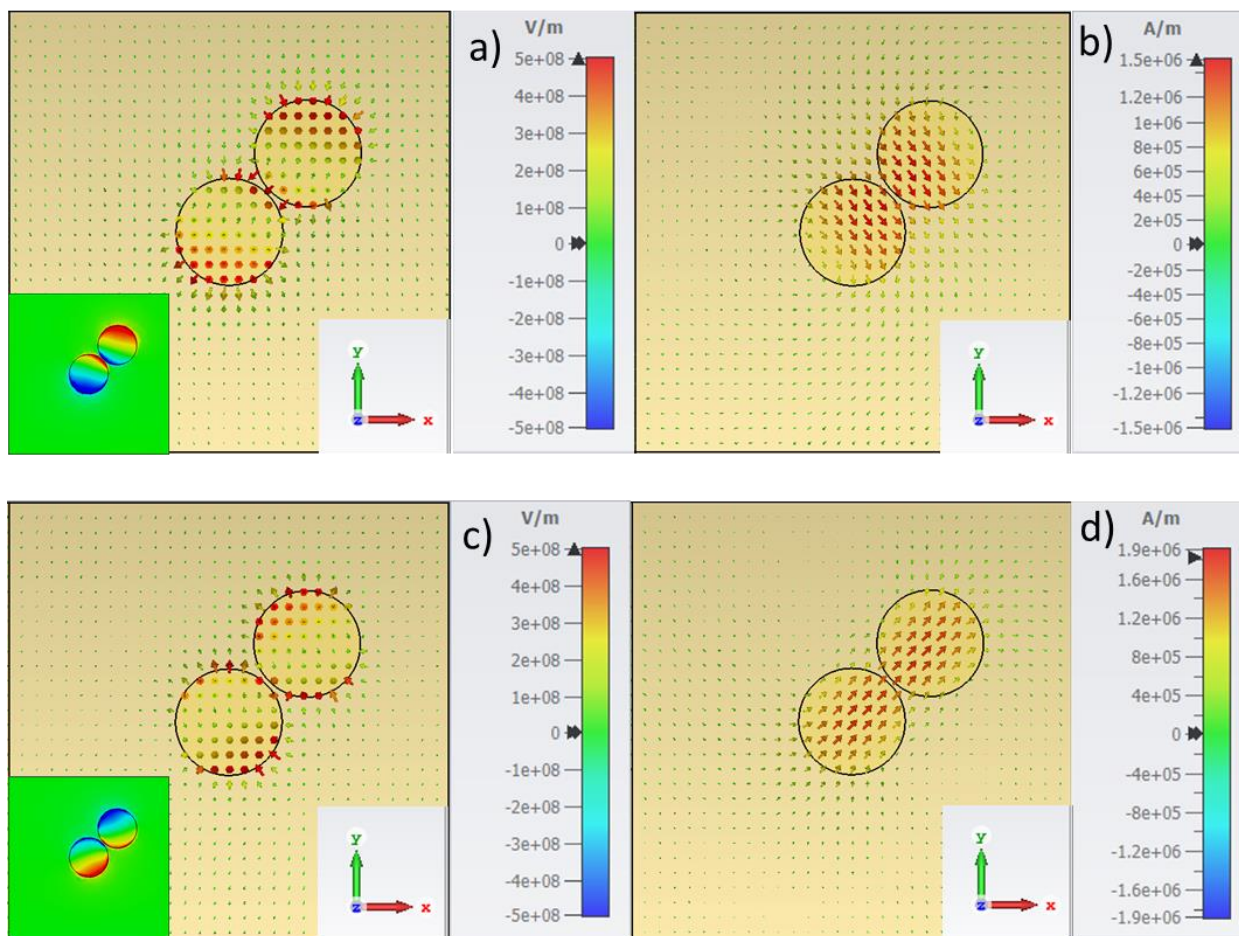


Figure 68 Cartes de champ en coupe verticale dans le plan $z=120$ nm et $\rho=1$ nm aux fréquences $f=311$ THz a) champ \mathbf{E} b) champ \mathbf{H} et $f=362$ THz c) champ \mathbf{E} et d) champ \mathbf{H}

On remarque que ces deux modes sont caractérisés par une répartition différente du champ \mathbf{E} . Pour le mode à 311 THz, les charges électriques sont dans la direction de l'axe du dimère, tandis qu'elles sont réparties orthogonalement dans le cas du mode à 362 THz. L'encart des Figure 68a) et c), représentant la composante E_z du champ, permet de visualiser plus clairement cette répartition. Cela explique pourquoi la position spectrale du mode à plus basse fréquence dépend de la distance ρ , contrairement au mode à 362 THz, car le couplage est plus faible pour ce mode (voir Figure 66a)). Ces différences se retrouvent sur l'orientation du champ magnétique, qui est orthogonal entre les deux modes, dans les directions $\theta=-45^\circ$ et $\theta=+45^\circ$ respectivement (voir Figure 68b) et d)). Ainsi, la diminution des distances inter-piliers fait apparaître des modes de résonance supplémentaires, suivant l'orientation des piliers. Cette hybridation n'existe pas pour l'orientation de 90° , ce qui montre que celle-ci a lieu lorsque la symétrie de la structure est brisée. Lorsque le nombre de piliers augmente, on peut supposer que de nouveaux modes d'absorption apparaissent. En résumé, on peut retenir que le rapprochement des piliers a tendance à décaler certains modes vers les basses fréquences, comme ce qu'on observe lorsque l'on rapproche des particules plasmoniques entre elles [88]. L'augmentation de la densité permet évidemment de réduire les distances entre voisins, on comprend donc son rôle dans l'augmentation de la largeur de bande. D'autre part, le désordre peut également contribuer à la réduction des distances entre voisins, on comprend donc également pourquoi il permet d'augmenter légèrement la largeur de

bande observée en *Figure 61c*). Il est à noter que la largeur spectrale d'absorption de nos distributions denses (bande 200-400 THz environ) est comparable à l'étalement spectral des modes en basses fréquences que l'on a identifié dans le dimère pour les orientations $\theta=45^\circ$ et 90° . La fréquence du mode de plus basse fréquence pour $\theta=45^\circ$ et $\rho=1$ nm est 265 THz et non 200 THz, mais il est à prévoir qu'une réduction de la distance permet d'amener ce mode autour de 200 THz, car la position spectrale est de plus en plus dépendante de ρ à mesure qu'elle devient faible. En effet, comme expliqué en introduction du paragraphe II3, ici les distances entre piliers voisins peuvent aller jusqu'au contact.

II44 Influence de la densité de résonateurs

Nous allons désormais nous intéresser à l'influence de la densité de piliers sur la MS. De manière symétrique au paragraphe précédent, nous allons représenter l'absorption en fonction de la fréquence pour un paramètre σ/p constant, mais des densités variables.

Les figures suivantes présentent les courbes d'absorption pour un paramètre σ/p de 0 jusqu'à 0,4 par pas de 0,1 puis $\sigma/p=1$ et enfin $\sigma/p=\infty$, pour les cinq densités étudiées précédemment.

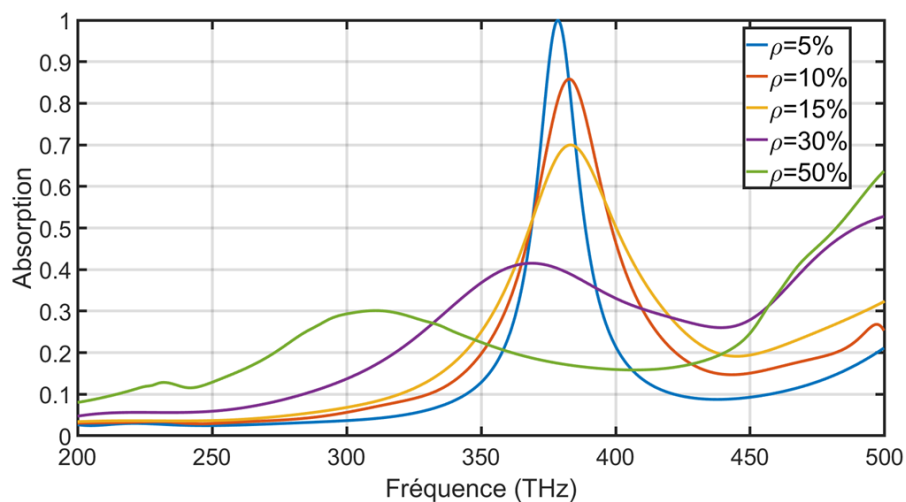


Figure 69 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=0$ et différentes valeurs de densité

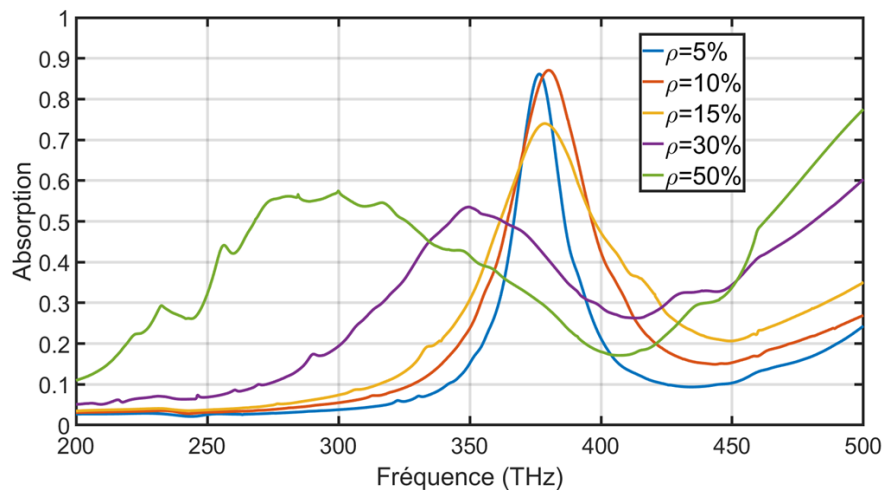


Figure 70 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=0,1$ et différentes valeurs de densité

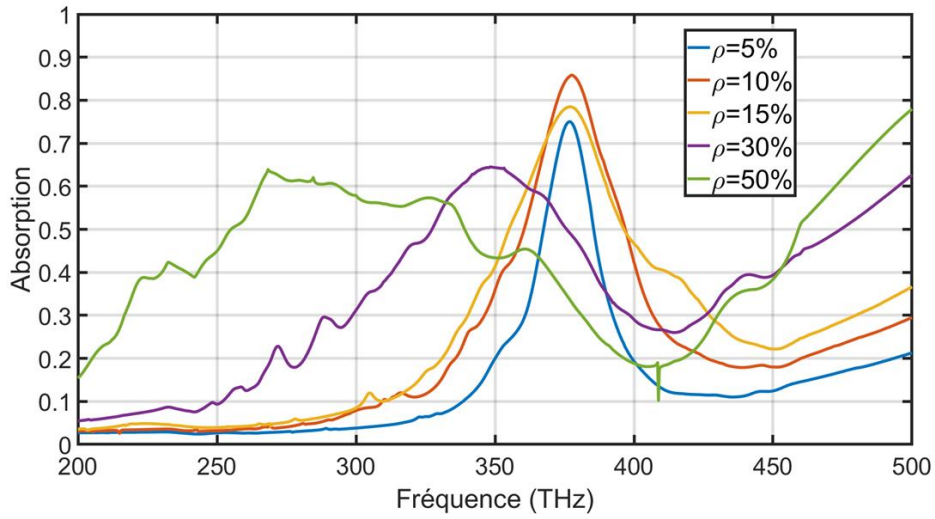


Figure 71 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=0,2$ et différentes valeurs de densité

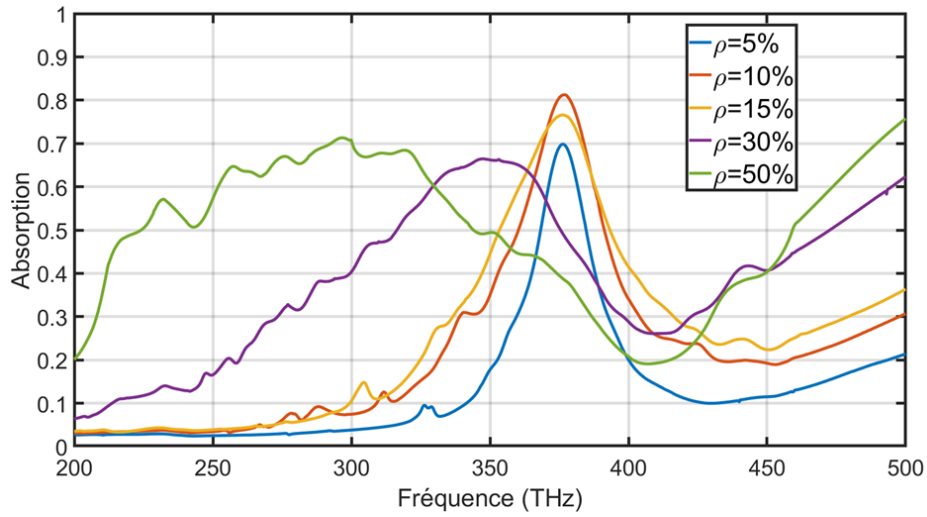


Figure 72 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=0,3$ et différentes valeurs de densité

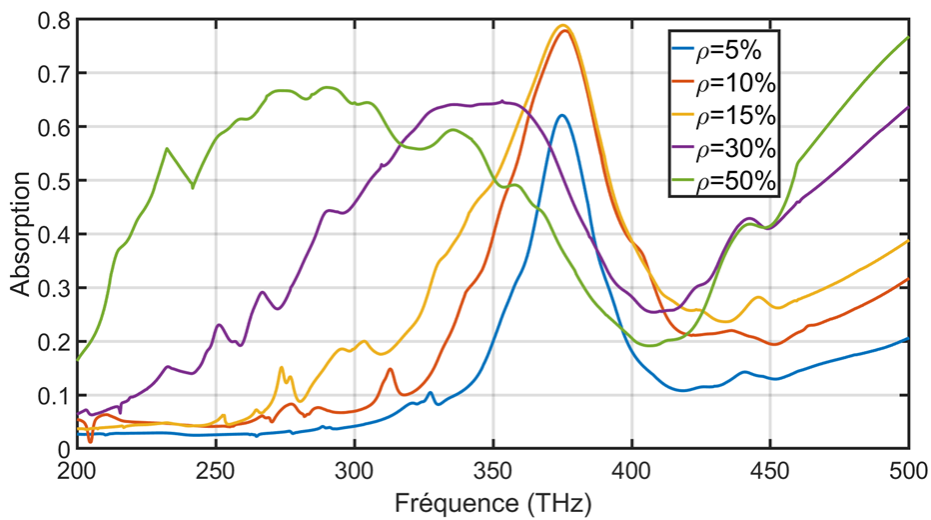


Figure 73 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=0,4$ et différentes valeurs de densité

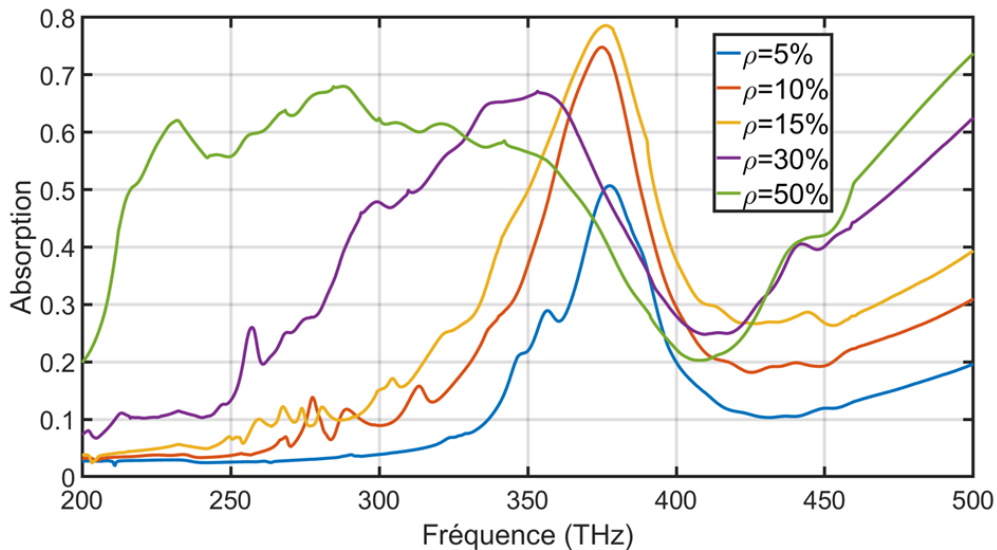


Figure 74 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=1$ et différentes valeurs de densité

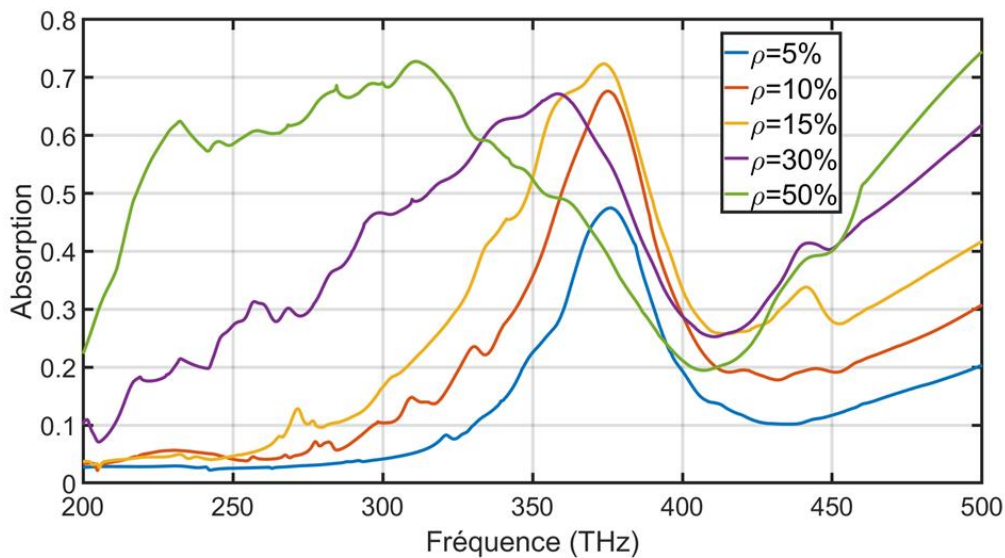


Figure 75 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=\infty$ et différentes valeurs de densité

L'information contenue dans ces graphiques est la même que celle du paragraphe précédent. En particulier, on peut dresser le même bilan de ces courbes que celui présenté en *Figure 61*. Cependant, l'effet de la variation de la densité apparaît plus clairement. Tout d'abord, on voit que pour chaque niveau de désordre l'augmentation de la densité se traduit par une diminution de la fréquence de résonance. Ceci s'explique de la même manière que la diminution de la fréquence d'absorption liée à l'augmentation du désordre qui diminue la distance moyenne avec les premiers voisins notamment : de manière encore plus évidente et avec un effet encore plus visible, l'augmentation de la densité rapproche les piliers entre eux, donc les observations de [88] s'appliquent aussi.

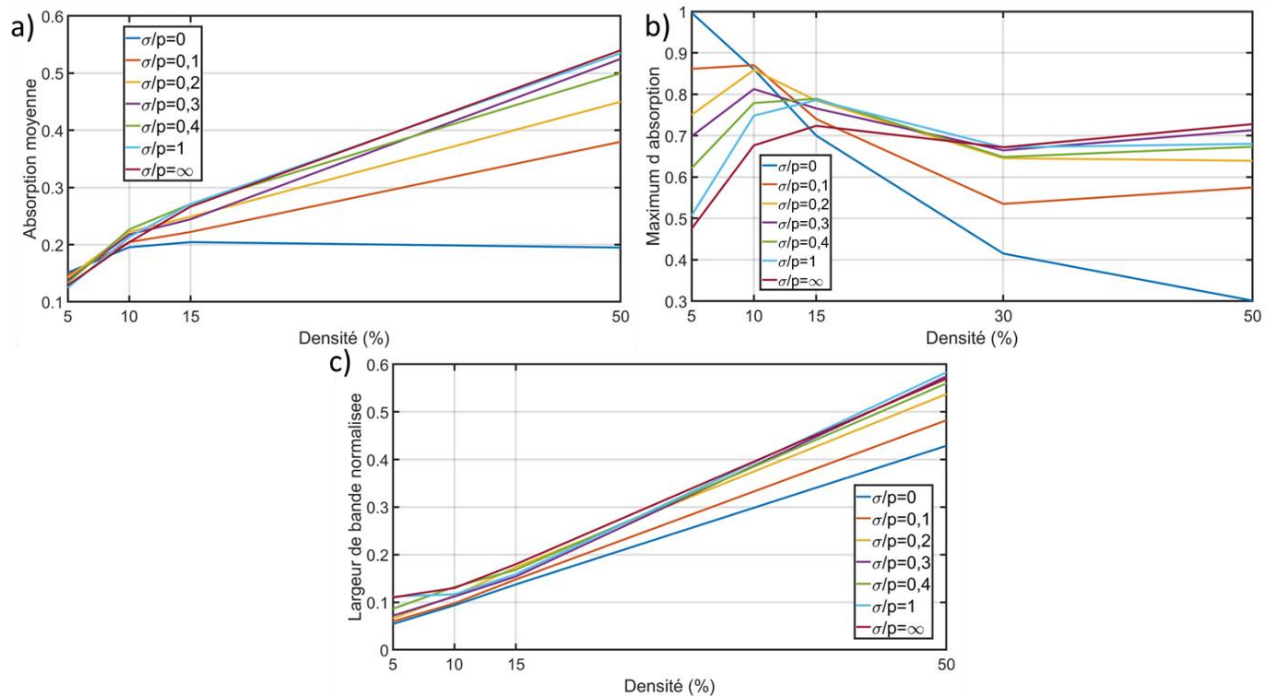


Figure 76 a) Absorption moyenne en fonction de la densité pour différentes valeurs de σ/p b) Maximum d'absorption en fonction de la densité pour différentes valeurs de σ/p et c) Largeur de bande normalisée en fonction de la densité pour différentes valeurs de σ/p

La Figure 76 montre les courbes de la Figure 61 mais représentées en fonction de la densité. Nous pouvons de même remarquer avec plus de clarté l'effet de la densité sur les caractéristiques de l'absorption. L'augmentation de la densité permet d'augmenter de manière monotone l'absorption moyenne, sauf dans le cas périodique. L'absorption moyenne est maximale pour $\sigma/p=0,4$ pour les densités de 10 et 15% (Figure 76a). En configuration périodique ($\sigma/p=0$), le maximum diminue de manière monotone avec la densité, et il augmente au contraire de manière monotone avec la densité dans le cas $\sigma/p=\infty$ jusqu'à une densité de 15%, puis il se stabilise autour de 0,7. En revanche, pour les valeurs de désordre intermédiaires, il existe un optimum du maximum d'absorption en fonction de la densité. Par exemple, pour $\sigma/p=0,4$, celui-ci est atteint pour une densité de 15%. Lorsque l'on se place à cette densité, les niveaux de désordre qui donnent le meilleur niveau d'absorption maximale sont ainsi $\sigma/p=0,4$ et $\sigma/p=1$ (Figure 76b). L'effet de la densité sur la largeur de bande normalisée est plus simple : elle augmente de manière monotone avec la densité pour tout niveau de désordre. En outre, les plus forts désordres sont ceux qui présentent les plus grandes largeurs de bande à toutes les densités (Figure 76c). En résumé, augmenter la densité permet d'augmenter l'absorption moyenne et la largeur de bande, en revanche, le maximum d'absorption est atteint pour des densités intermédiaires pour des désordres de valeur intermédiaire.

Il est à noter que les courbes sont tracées pour une quantité σ/p constante vis-à-vis de la loi cible, mais que les valeurs de déplacement réellement atteintes sont plus faibles pour les grandes densités (voir Figure 63), ce qui limite un peu la portée de cette représentation.

II45 Comportement de la MS désordonnée en fonction de la polarisation

Tout d'abord, une distribution de piliers de réseau périodique carré a un comportement strictement identique suivant la polarisation de \mathbf{E} dans le plan de la MS, comme on peut le voir sur la *Figure 77* qui montre l'absorption d'une distribution périodique de période $p=520$ nm pour trois polarisations de l'onde incidente de 0 à 90°. On remarque que les trois courbes sont strictement confondues.

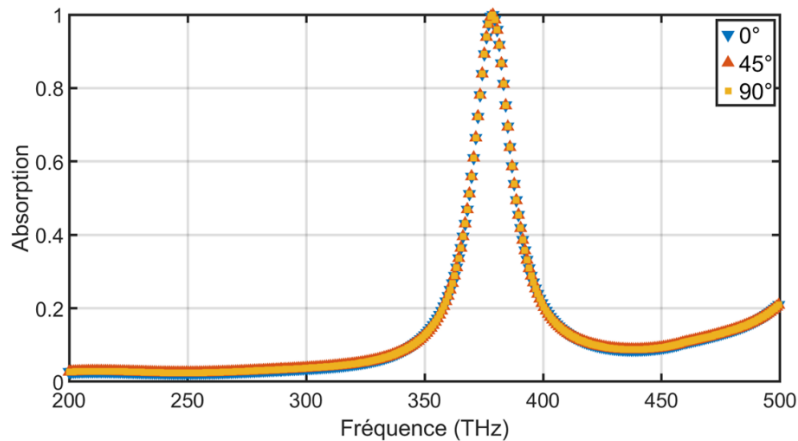


Figure 77 Absorption en fonction de la fréquence pour une distribution périodique de période $p=520$ nm et trois valeurs de polarisation

En effet, la configuration est identique si l'on tourne la polarisation du champ incident de 90°. Pour la polarisation oblique de 45°, on peut décomposer le champ \mathbf{E} correspondant selon une composante $E_x = \frac{\sqrt{2}}{2}E_0$, et une composante $E_y = \frac{\sqrt{2}}{2}E_0$, avec E_0 l'amplitude de \mathbf{E} . Par le principe de superposition, le champ total est donc équivalent à un champ \mathbf{E} d'amplitude $E = \sqrt{E_x^2 + E_y^2} = E_0$ polarisé dans la direction \mathbf{x} . Ce même raisonnement est valable pour n'importe quelle polarisation dans le plan.

Dès que cette symétrie est brisée, par exemple pour un réseau périodique à géométrie rectangulaire, c'est-à-dire avec une période p_x horizontale et p_y verticale différentes, le comportement d'absorption de la MS sera dépendant de la polarisation. La *Figure 78* montre la courbe d'absorption pour un réseau rectangulaire de période $p_x=350$ nm et $p_y=650$ nm. L'image insérée représente la cellule élémentaire simulée et le système cartésien de coordonnées utilisé.

Nous remarquons que le comportement est différent suivant la polarisation. Nous voyons que si $p_y=650$ nm est la période optimale qui permet d'obtenir une absorption unitaire à une certaine fréquence pour $p_x=350$ nm fixé, ceci n'est vrai que pour la polarisation \mathbf{y} . Pour la polarisation \mathbf{x} , l'absorption n'est pas tout à fait unitaire pour cette même géométrie et le pic d'absorption est décalé vers les hautes fréquences par rapport à la polarisation précédente. Enfin, une variation de la polarisation modifie les conditions d'excitation des modes. On voit sur la *Figure 78a)* que la polarisation \mathbf{y} excite un mode qui n'est pas excité en polarisation \mathbf{x} . Les cartes de champ de ce mode sont représentées en *Figure 78b)* et *c)* et montrent une répartition de \mathbf{E} similaire au mode MIM autour de 375 THz (voir *Figure 78b)*), le champ magnétique est quant à lui réparti différemment. Il est certes intense sous les piliers comme le mode

MIM à 375 THz, mais il déborde également fortement autour du résonateur. On remarque que la période verticale $p_y=650$ nm est très proche de la longueur d'onde du mode, qui vaut $\lambda=677$ nm. Ce mode est donc un mode diffractant dans le plan de la MS, ce qui explique que le champ magnétique soit intense en dehors du résonateur. Le champ est piégé et dissipé dans le plan de la MS, d'où l'augmentation de l'absorption. Ce mode est donc lié à la périodicité et ne doit donc pas être confondu avec le mode identifié autour de 440 THz en *Figure 66b*) par exemple.

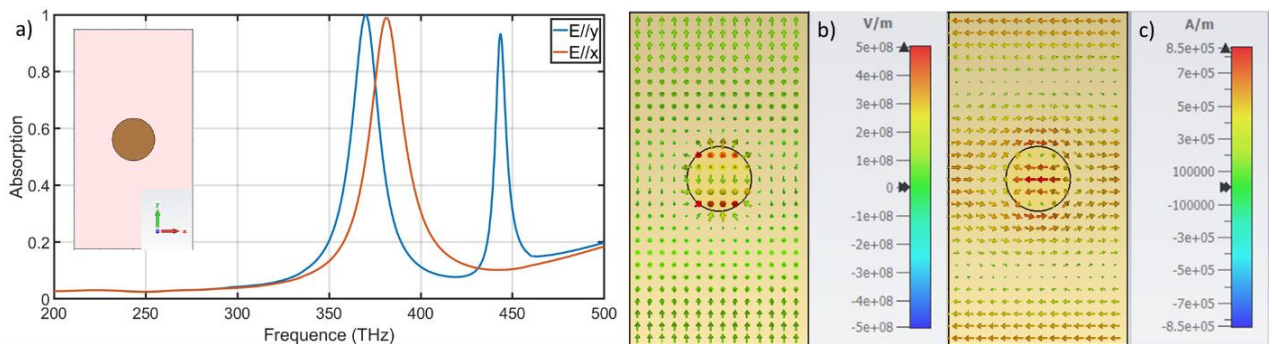


Figure 78 Absorption en fonction de la fréquence pour une distribution périodique de période $p_x=350$ nm et $p_y=650$ nm pour deux polarisations orthogonales de l'onde incidente et cartes de champ en coupe horizontale dans le plan $z=120$ nm à $f=443,5$ THz b) champ E et c) champ H

Lorsque l'on introduit du désordre, la structure n'est plus invariante par rotation de 90° . Les propriétés d'absorption sont donc dépendantes de la polarisation. La *Figure 79* montre la courbe d'absorption pour une onde incidente TE avec $E//y$ et TM avec $E//x$ pour une distribution désordonnée de paramètre $\sigma/p=1$ et une période initiale $p=158$ nm.

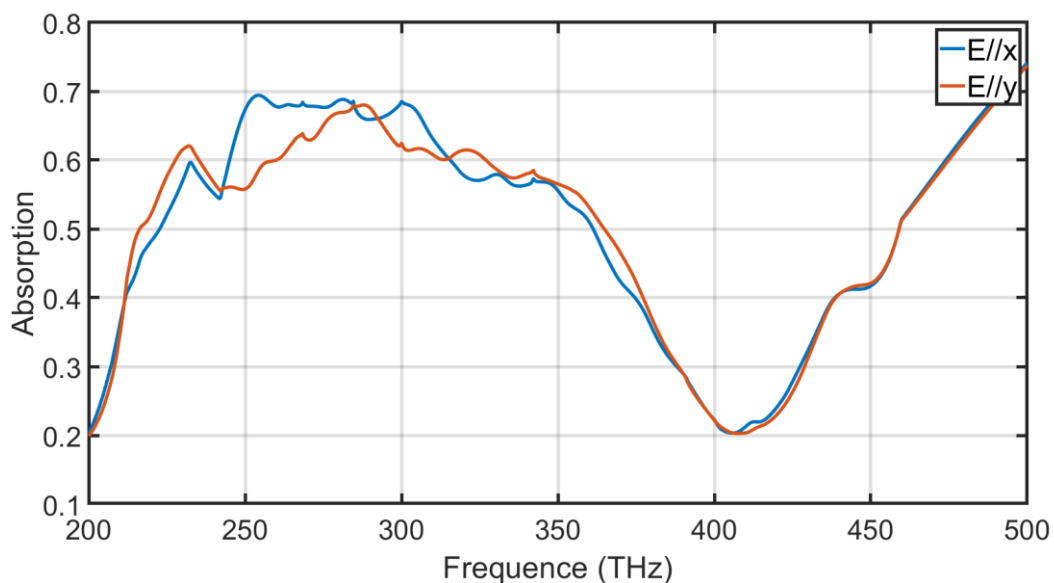


Figure 79 Absorption en fonction de la fréquence pour une distribution désordonnée de paramètres $p=158$ nm et $\sigma/p=1$ pour une polarisation TE et TM de l'onde incidente

Nous voyons que l'absorption est différente en fonction de la polarisation. En revanche, cette dépendance est en général faible comme on peut le constater sur cet exemple, car comme les lois de

déplacement horizontal et vertical sont identiques, les déplacements sont statistiquement symétriques en x et y . Ici, sur un domaine de simulation de $3,16 \times 3,16 \mu\text{m}^2$ constitué par la super cellule, on perçoit de légères différences au niveau de la courbe d'absorption en fonction de la polarisation incidente, mais il est à prévoir que ces différences deviennent plus faibles pour des domaines de simulation de plus grande taille en raison de la « loi des grands nombres » qui gouverne la distribution.

En revanche, si l'on introduit du désordre dans la MS de manière fortement anisotrope, on peut jouer sur les couplages dans des directions privilégiées et ainsi créer des MS dont le comportement sera fortement sensible à la polarisation incidente. Une manière de procéder est d'utiliser l'algorithme utilisé jusqu'ici pour calculer la position horizontale et verticale du centre des piliers sur la MS, et de l'adapter en fixant une coordonnée (par exemple la coordonnée y du centre de chaque pilier) qui ne sera pas modifiée par le processus MCMC. De cette façon, on obtient une distribution désordonnée selon une seule dimension, semblable aux distributions étudiées dans [68]. Nous allons étudier le comportement de telles MS. La *Figure 80* montre la courbe d'absorption pour deux polarisations respectivement TE et TM d'une MS désordonnée selon la coordonnée x seulement, construite à partir d'un réseau initial de période $p=158 \text{ nm}$, et un paramètre de loi de déplacement horizontal $\sigma/p=1$. Une vue de dessus de la MS correspondante est insérée dans le graphique. Les deux courbes d'absorption (nommées $\mathbf{E//y}$ 1D et $\mathbf{E//x}$ 1D en légende) sont comparées respectivement à l'absorption d'une MS de même densité mais dont les piliers ont été désordonnés selon les deux directions et éclairée en incidence normale par un champ TE polarisé selon l'axe y (légende : $\mathbf{E//y}$ 2D) ou TM (légende : $\mathbf{E//x}$ 2D), et à l'absorption d'une distribution périodique de période $p=158 \text{ nm}$.

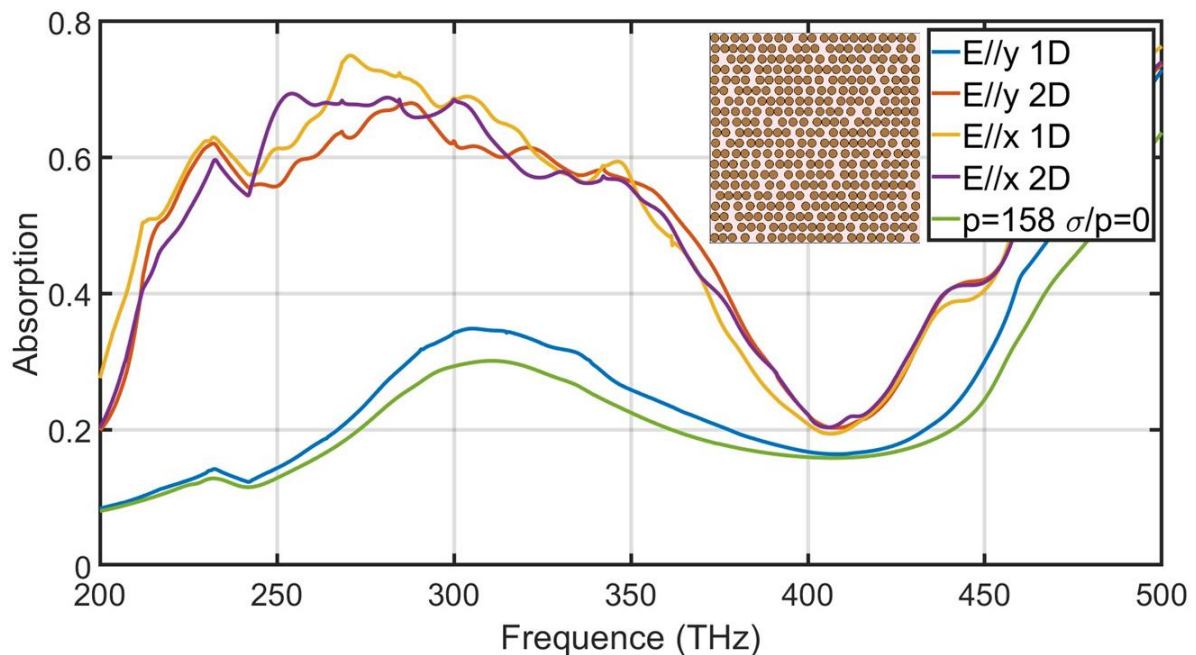


Figure 80 Absorption en fonction de la fréquence pour une distribution de piliers désordonnés selon la direction x et de paramètres $p=158 \text{ nm}$ et $\sigma/p=1$

Sur la représentation en vue de dessus de la MS, on voit que les piliers sont répartis en ligne car seule l'abscisse a pu changer par rapport à la configuration périodique de départ. On voit que le comportement de la MS est très différent suivant la polarisation incidente choisie (voir les courbes bleue et jaune). Si la polarisation est dans la direction du désordre c'est-à-dire la direction \mathbf{x} , la courbe d'absorption correspondante en fonction de la fréquence est très semblable à celle qu'on obtient pour une structure désordonnée selon les deux dimensions de même densité et de même paramètre de désordre $\sigma/p=1$. En revanche, pour la polarisation dans la direction \mathbf{y} non désordonnée, la courbe d'absorption représentée en bleu est très similaire à celle d'un simple réseau périodique. Ce type de MS a ainsi un comportement polarisant, avec une composante du champ EM incident fortement absorbée et la composante orthogonale au contraire fortement réfléchie. Ceci ne peut s'expliquer qu'en invoquant les effets de couplage détaillés au paragraphe précédent, puisque suivant la polarisation, les positions sont invariantes donc le facteur de structure S est identique.

II5 Quelques pistes d'optimisation des MS désordonnées

Les discussions précédentes ont mis en évidence l'importance des effets de couplage en champ proche. Pour augmenter ces couplages, on peut forcer la proximité entre résonateurs en définissant des structures conglomerées. Cette approche est développée dans le paragraphe suivant.

II51 Conception et simulation de structures conglomerées

On travaille avec des MS de densité 50% fortement désordonnées, qui présentent les meilleures efficacités moyennes d'absorption. Une distribution désordonnée initiale est calculée par le processus MCMC de paramètre $\sigma/p=1$. Puis, pour chaque pilier, on repère le plus proche voisin. Si ce voisin est situé à une distance inférieure à un seuil arbitraire qu'on peut appeler la distance d'attraction, il « attire » le premier qui se déplacera le long de l'axe qui relie le centre des deux piliers, et vient se placer à une distance bord à bord de 1 nm de son pilier attracteur. Si plusieurs piliers sont venus au contact d'un autre et que ce processus implique un recouvrement entre piliers « attirés », on fait tourner le pilier autour de son pilier attracteur jusqu'à trouver un espace libre. Enfin, si aucun espace libre n'est disponible, on replace le pilier à sa position initiale. En outre, un pilier qui en a attiré un autre devient fixe. Le programme qui effectue ces transformations est fourni en annexe 2. La *Figure 81* montre des distributions de densité 50%, dont l'une est générée par le processus MCMC de paramètre $\sigma/p=1$, et l'autre correspond à la version générée par le processus décrit ci-dessus, que nous appellerons sa version « conglomerée ».

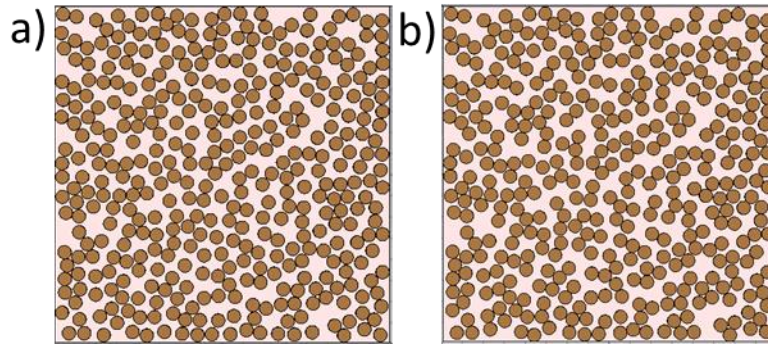


Figure 81 Distributions de piliers générées par a) le processus MCMC de paramètre $\sigma/p=1$ et b) la version conglomérée de la distribution a)

Nous voyons que les positions des piliers sur ces MS sont très voisines l'une de l'autre, hormis que les piliers dans la distribution de droite font chacun partie d'ensembles de NP « liées » entre elles. La Figure 82 montre les courbes d'absorption correspondantes en fonction de la fréquence.

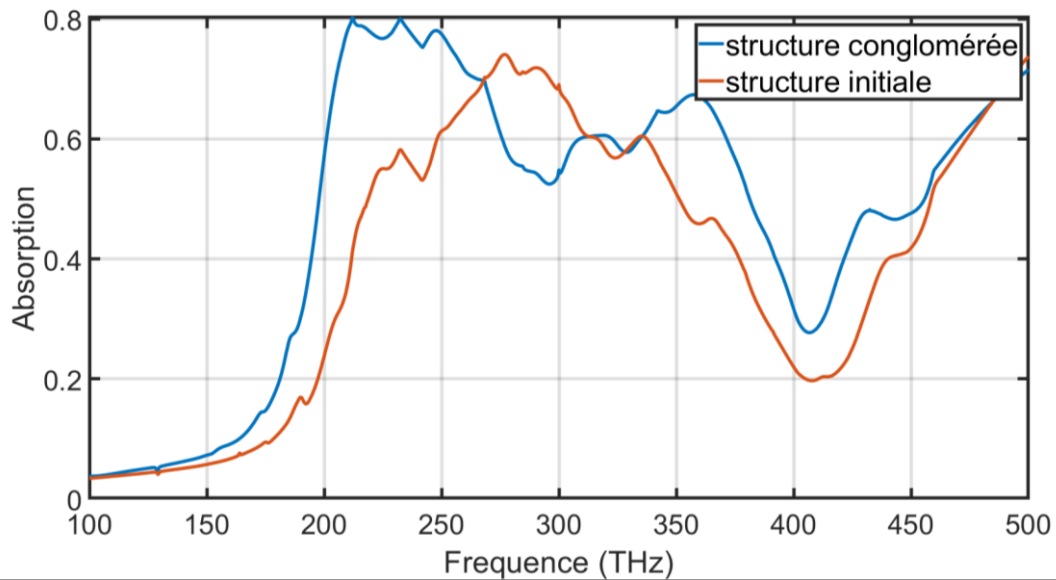


Figure 82 Absorption en fonction de la fréquence pour deux MS initiale et conglomérée, de paramètres $p=158$ nm et $\sigma/p=1$

On voit que le passage à une configuration conglomérée a tendance à baisser la fréquence du maximum d'absorption vers les basses fréquences, par rapport à la configuration non conglomérée de référence. D'autre part, la création de conglomerats semble entraîner également une augmentation de l'absorption vers les plus hautes fréquences dans le domaine [350 ; 400] THz. On remarque que le maximum d'absorption A_{\max} est plus grand ($A_{\max}=0,8$) dans le cas de la distribution conglomérée par rapport à la distribution de référence ($A_{\max}\sim 0,7$). Cela se fait au détriment du niveau d'absorption dans le domaine [270 ; 310] THz, où la structure initiale est plus absorbante. Néanmoins, l'absorption moyenne sur la plage [200 ; 400] THz pour les configurations de référence et conglomérée vaut respectivement : 0,54 et 0,63. Il s'agit d'une augmentation significative. Enfin, il apparaît que le maximum d'absorption totale sur la bande du mode MIM est atteint pour la configuration « conglomérée » dense de fort désordre, parmi toutes les configurations simulées.

Il semble donc que créer des ensembles de particules très rapprochées les unes des autres permette d'améliorer un peu les propriétés d'absorption. Cela semble être la conséquence du fait que la procédure crée des ensembles de particules très fortement couplées.

En conclusion, cette stratégie est intéressante même si elle nécessite pour être exploitée concrètement des résolutions technologiques permettant de fabriquer des structures à l'échelle du nanomètre. Néanmoins, elle nous a permis d'une part de valider les conclusions tirées dans les discussions précédentes, et pourrait d'autre part constituer une piste d'optimisation pertinente pour des MS conçues dans des domaines de plus basse fréquence telle que l'infrarouge moyen ou le THz où les distances mises en jeu sont plus importantes et les structures conglomérées plus facilement réalisables.

II52 Influence du diamètre d'exclusion

Nous verrons au chapitre suivant qu'il est difficile d'obtenir des précisions de dimensions inférieures à la dizaine de nm vis-à-vis de la résolution des motifs cylindriques. Il semble raisonnable de s'imposer une distance minimale entre piliers de 20 nm afin d'éviter les contacts involontaires. Ce facteur est à prendre en considération dans la conception des MS, car l'introduction d'une distance minimale entre piliers limite l'amplitude des déplacements et donc la quantité de désordre possible dans la MS. A titre d'exemple, pour une densité de 50%, en configuration périodique, la distance entre piliers voisins est de 30 nm environ. La *Figure 83a*) représente l'absorption d'une MS de densité 50% pour des contraintes de distance minimale entre piliers croissantes. L'écart d_{\min} entre piliers correspond à une distance bord à bord minimale, variant entre 0 et 20 nm. La distribution insérée dans le graphique correspond à la MS de distance minimale $d_{\min}=20$ nm. A titre de comparaison, l'absorption réalisée par la MS périodique de même densité est également représentée.

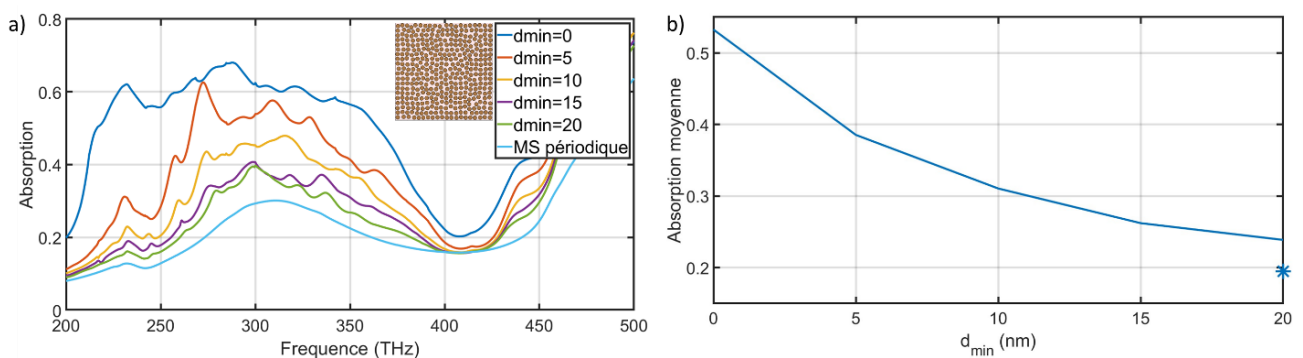


Figure 83 a) Absorption en fonction de la fréquence pour des distributions de piliers de paramètres $p=158$ nm et $\sigma/p=1$ en fonction de d_{\min} et b) Absorption moyenne en fonction de d_{\min} pour $p=158$ nm, $\sigma/p=1$. L'étoile bleue représente l'absorption dans le cas périodique de même densité

Nous constatons que l'introduction d'une contrainte supplémentaire sur le déplacement des piliers peut exercer une grande influence sur l'absorption des MS. On remarque en effet une nette diminution de l'absorption par rapport à la MS sans contrainte, notamment vers les basses fréquences, dans le domaine [200 ; 275] THz dès que d_{\min} excède 5 nm. Les valeurs de l'absorption totale en fonction de d_{\min} sont

représentées en *Figure 83b*). Cette absorption totale chute fortement quand on augmente les corrélations de position.

La diminution du niveau moyen d'absorption est la conséquence de l'apparition d'un ordre partiel de plus en plus grand à mesure que d_{\min} augmente. L'augmentation de d_{\min} limite les déplacements depuis la configuration périodique initiale, dont on a vu au paragraphe II43 qu'elle était associée à de faibles niveaux d'absorption. Pour cette densité, la distance bord à bord entre piliers est de seulement 30 nm en configuration périodique : il est donc logique que les courbes spectrales d'absorption soient proches de celle de la configuration périodique lorsque la distance minimale imposée devient proche de 30 nm, comme on peut le voir sur la *Figure 83a*) où les courbes d'absorption pour $d_{\min} \geq 15$ nm sont similaires à celle de la configuration périodique de même densité. Cela montre que même si le caractère hyperuniforme de la distribution permet de diminuer la diffusion, ceci n'entraîne pas une augmentation de l'absorption : au contraire, la désadaptation d'impédance engendrée réduit fortement l'absorption.

II6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons utilisé la méthode des éléments finis pour simuler le comportement des métasurfaces. Nous avons validé les paramètres de génération du maillage sur un exemple simple de référence, et employé les conditions aux limites qui se rapprochent le plus des conditions expérimentales que nous traiterons dans le chapitre suivant. En outre, le recours à des super-cellules périodiques pour étudier le comportement désordonné est un compromis nécessaire pour pallier la taille limitée des domaines de simulation.

Le désordre est introduit par perturbation de la position des méta-atomes à partir d'une configuration périodique initiale, au moyen d'une variable aléatoire suivant une loi normale centrée d'écart-type σ . Une condition supplémentaire de non recouvrement des résonateurs est aussi intégrée à la procédure de génération des distributions. Une autre approche basée sur la génération de configurations désordonnées sans corrélation, dans laquelle seule la contrainte de non recouvrement intervient, est utilisée comme cas désordonné limite, associé par commodité au paramètre $\sigma = \infty$. Le facteur de structure a été calculé pour caractériser les distributions désordonnées en fonction de σ et pour les densités de 5 et 50%. Il apparaît d'une part que pour une densité fixée, le facteur de structure diminue lorsque σ augmente. D'autre part, à σ fixé, le facteur de structure diminue lorsque la densité augmente. Ceci est la conséquence de la condition de non recouvrement qui restreint de plus en plus les positions accessibles pour les méta-atomes à mesure que la densité augmente, ce qui diminue la quantité de désordre que l'on peut introduire.

Nous avons ensuite dimensionné les paramètres géométriques de la métasurface en configuration périodique par des études numériques paramétriques successives pour obtenir la condition de couplage critique à la longueur d'onde $\lambda = 800$ nm. La densité optimale correspondante est de 5%. Nous avons montré comment calculer l'absorption et l'extinction à partir des simulations, qui fournissent les paramètres S des différents modes de Floquet propagatifs dans le domaine de simulation. L'absorption

est la grandeur qui nous intéresse plus particulièrement car le champ diffusé par la métasurface ne participe pas davantage au couplage opto-mécanique que le champ directement réfléchi par celle-ci. Ainsi, nous avons étudié ensuite l'effet du désordre sur le comportement d'absorption. Nous avons montré que si l'introduction du désordre est peu judicieuse dans le cas d'une métasurface périodique en situation de couplage critique (densité de 5%), elle est au contraire intéressante pour les plus fortes densités. En effet, pour les densités de 10 et 15%, l'introduction d'un niveau de désordre $\sigma/p \sim 0,4$ permet de garder un maximum d'absorption élevé voire de l'augmenter, tout en amplifiant légèrement la largeur de bande, ce qui constitue un compromis intéressant. Pour les densités plus importantes (>30%), un plateau d'absorption apparaît, dont le niveau d'absorption est largement augmenté par l'introduction du désordre. Grâce à l'introduction de désordre dans la métasurface, il est ainsi possible d'obtenir des niveaux d'absorption moyens de plus de 0,5 sur une bande de fréquence relative de près de 0,6 pour la densité de 50%.

Nous avons montré par l'étude numérique d'un réseau de dimères, que le plateau d'absorption dans les distributions denses est la conséquence de l'hybridation des modes sous l'effet du couplage entre résonateurs, qui résonnent localement à des fréquences propres. L'augmentation du niveau d'absorption est également la conséquence de la modification des conditions de couplage entre résonateurs sous l'effet de l'introduction du désordre. Son rôle a été mis en évidence par l'étude de configurations de désordre 1D, du paramètre de distance minimale entre voisins, et de structures conglomérées. En revanche, cette augmentation se produit au prix d'un accroissement du niveau de diffusion lorsque σ/p augmente, à densité constante. Il est à noter que le rôle du couplage désordonné n'est pas décrit par le facteur de structure qui est une description à priori de la configuration géométrique et qui ne tient pas compte du comportement physique des objets.

Cette étude numérique nous a permis de mieux comprendre le fonctionnement des métasurfaces lorsque l'on modifie les positions des nanoparticules sur la surface. Cette étape est importante pour nous guider dans la conception et la fabrication de métasurfaces dans le but de réaliser une étude expérimentale des effets estimés par simulation. Ce sont à ces aspects auxquels nous allons nous attacher dans la suite.

Chapitre III : Fabrication et caractérisation des métasurfaces

III1 Introduction

L'objet de ce chapitre est de vérifier expérimentalement les résultats obtenus par simulation présentés au chapitre précédent. Il convient toutefois de noter certaines différences avec les conditions de simulation. En effet, les contraintes liées aux ressources numériques nous ont obligé à introduire une périodicité dans les distributions désordonnées étudiées en simulation. De plus, les contraintes de fabrication limitent la précision des dimensions fabriquées. Enfin les contraintes liées à la mesure expérimentale telles que la taille finie du faisceau laser entraîne une répartition spatiale de l'énergie lumineuse non absolument uniforme contrairement à l'onde plane utilisée en simulation. De même, l'accordabilité du laser en fréquence se fait au prix d'une perte de puissance. Tous ces paramètres sont à considérer et seront discutés dans ce chapitre. Dans un premier temps, nous présenterons les différentes étapes de fabrication, la conception ainsi que les techniques de caractérisation des échantillons. Dans un deuxième temps, nous exposerons les techniques expérimentales, puis nous discuterons les résultats expérimentaux en les confrontant aux résultats de simulation. Enfin, nous mettrons en évidence numériquement l'intérêt d'inclure l'épaisseur des piliers résonants dans la conception de futurs échantillons.

III2 Description des étapes de fabrication

Dans ce travail, nous utilisons les techniques maîtrisées de l'état de l'art sans chercher à optimiser ou améliorer les processus. La fabrication est réalisée sur un substrat de verre circulaire de 1 pouce qui sert simplement de support mécanique à l'empilement des trois couches de la structure MIM. L'ensemble des étapes a été réalisé dans l'environnement de salle blanche de l'IEMN avec le concours des ingénieurs responsables des équipements.

III21 Lithographie électronique

Nous l'employons dans ce travail de thèse pour former les piliers de l'empilement MIM. Elle repose sur l'écriture au moyen d'un faisceau électronique. L'intérêt d'utiliser des électrons est que le faisceau peut être très fin car la longueur d'onde des électrons est faible, ce qui limite les phénomènes de diffraction et permet ainsi de focaliser fortement le faisceau. La longueur d'onde dépend de l'énergie des électrons, qui peut se contrôler par une tension d'accélération selon la relation [94] :

$$\lambda(nm) = \frac{1,23}{\sqrt{V}} \quad (39)$$

Dans cette relation, V est la tension d'accélération en Volts. Les tensions d'accélération employées sont en général de quelques kV, ce qui permet d'atteindre des longueurs d'onde bien inférieures au nm.

Les nanostructures sont formées par l'intermédiaire d'une résine électron-sensible. Ces résines sont des polymères dont les liaisons sont reconfigurables via l'exposition à un faisceau d'électrons. Les

propriétés chimiques, et notamment la solubilité de la résine dans certains solvants, sont donc affectées par l'exposition. Il existe deux types de résine : les résines dites positives sont des résines non solubles au départ, qui le deviennent après exposition, et les résines négatives sont des résines solubles qui deviennent insolubles après l'étape d'exposition. Nous avons employé la résine positive CSAR-62 pour réaliser nos échantillons.

Le principe de la fabrication par lithographie est le suivant (voir *Figure 84*).

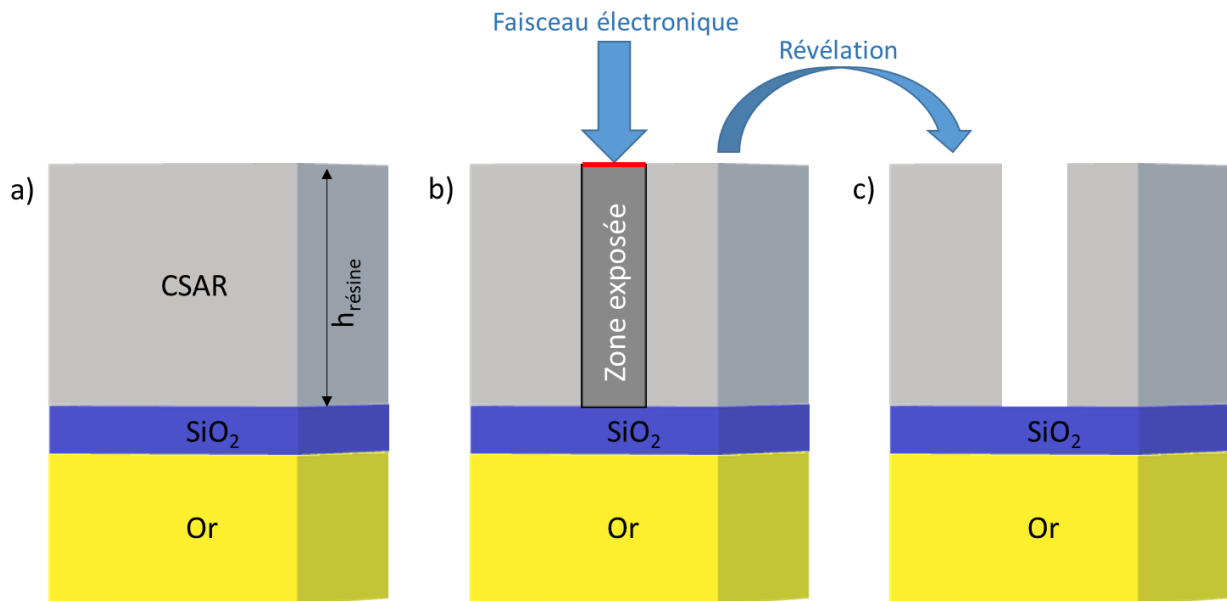


Figure 84 Principe de la lithographie pour la fabrication de nanostructures en trois étapes : a) Dépôt de la résine b) Exposition de la résine et c) Révélation

La résine CSAR-62 est déposée sur l'échantillon (*Figure 84a*). Ensuite, des zones cylindriques de la résine sont exposées par un faisceau d'électrons aux endroits où l'on souhaite former les piliers. On appelle cette étape l'exposition ou l'écriture (*Figure 84b*). La résine exposée est plongée dans une solution qui dissout les parties exposées et creuse ainsi des trous cylindriques. C'est l'étape du développement ou révélation (*Figure 84c*).

Dans nos MS, la surface occupée par les motifs sera inférieure à la surface sans motif : il est donc plus rapide et moins coûteux d'utiliser une résine positive et de l'exposer aux endroits des motifs, d'où le choix de la résine positive CSAR-62. Un paramètre important de la lithographie est l'épaisseur $h_{résine}$ de la résine. D'une part, cette épaisseur doit être suffisamment grande pour permettre le lift-off, comme nous aurons l'occasion d'y revenir au paragraphe III24. Cependant, cette épaisseur doit être d'autre part la plus faible possible pour limiter la dose d'exposition et ne pas nuire à la résolution. La dose est une mesure de la quantité de charges électroniques par unité de surface. Elle s'exprime généralement en $\mu\text{C}/\text{cm}^2$. A courant de faisceau donné, elle est donc proportionnelle à la durée d'exposition. Cette dose doit être suffisamment importante pour assurer que les électrons puissent pénétrer l'intégralité de l'épaisseur de résine, mais une dose trop importante réduit la précision de la zone exposée. En effet, la situation représentée en *Figure 84* est un schéma de principe fortement idéalisé. En réalité, l'interaction

du faisceau avec la surface supérieure entraîne la diffusion des électrons dans la couche de résine. Par ailleurs, la réflexion des électrons au cours de leur propagation, phénomène qualifié de rétrodiffusion, participe à l'élargissement de la zone exposée. La *Figure 85a*) illustre ces phénomènes au moyen d'une simulation de la propagation des électrons dans une résine PMMA. Par ailleurs, la proximité des motifs, qui peut être importante dans le cas d'échantillons de fortes densités, peut également favoriser une perte de résolution. Ce mécanisme est illustré sur la *Figure 85b*).

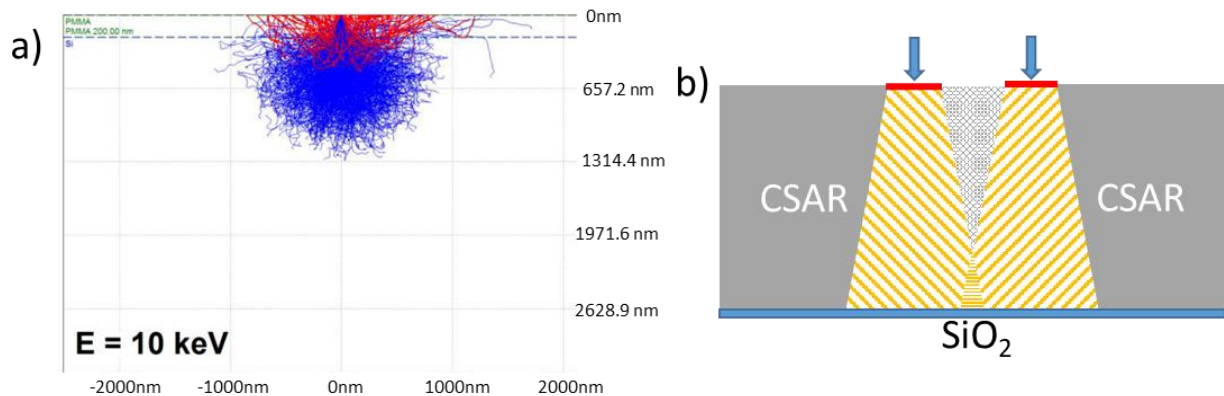


Figure 85 a) Simulation de la trajectoire des électrons d'une énergie incidente de 10 keV dans un échantillon contenant une résine PMMA déposée sur un substrat de Silicium. Reproduit de [94] b) Schéma illustratif du phénomène de recouvrement des zones d'exposition à cause des effets de proximité des électrons au cours de leur propagation dans la résine

Sur la *Figure 85a*), la résine, d'épaisseur $h_{résine}=200$ nm, est située entre les deux lignes bleues en pointillés. On voit clairement que le faisceau électronique, dont les trajectoires des électrons diffusés et rétrodiffusés sont représentées en bleu et en rouge respectivement, initialement focalisé autour de l'abscisse 0 nm, s'élargit à mesure que sa distance de propagation verticale augmente.

Lorsque plusieurs motifs proches doivent être formés, les effets de diffusion et rétrodiffusion constituent un problème car si deux zones d'exposition distinctes sont suffisamment proches, l'augmentation de la largeur de la zone exposée due à ces deux effets peut entraîner la fusion de ces motifs. La *Figure 85b*) illustre ce mécanisme. Les zones exposées de la résine sont représentées par les domaines hachurés en orange. L'élargissement de la zone d'exposition avec l'augmentation de la distance de propagation est supposé linéaire pour la simplicité du schéma. On comprend que la zone interstitielle de résine entre les zones exposées (le domaine gris quadrillé) peut être fragilisée et même détruite lorsque les zones exposées se recouvrent, alors même que les positions du faisceau représentées en rouge sont distinctes.

L'optimisation du procédé de lithographie sort du cadre de cette thèse. Toutefois, il est possible de réduire les défauts de fabrication par une conception judicieuse de l'échantillon. D'une part, en limitant l'épaisseur de la résine et donc la dose d'exposition. La règle couramment employée est de choisir une épaisseur $h_{résine} \sim 3h$, où h est l'épaisseur des nanostructures, de manière à faciliter l'étape de lift-off. En outre, l'élargissement de l'exposition de la couche supérieure de la résine peut être compensée en adaptant les zones d'exposition. On appelle cela faire un « sizing » : si l'on connaît le surplus de taille, on peut le compenser à l'avance en exposant volontairement une zone de résine plus restreinte.

Malgré ces précautions, nous pouvons prévoir qu'il ne sera pas possible de fabriquer des piliers de distance bord à bord arbitrairement petite sans induire de fusion de ces motifs comme l'illustre la *Figure 85b*).

Ainsi, nous avons souhaité connaître la résolution que l'on pouvait atteindre en lithographie électronique dans nos structures, c'est-à-dire la distance bord à bord minimale que l'on pouvait fabriquer sans percolation des motifs. Ce paramètre est important dans la mesure où l'introduction du désordre peut induire un rapprochement des piliers adjacents. En effet, les procédures de calcul des positions des piliers par l'algorithme MCMC que nous avons présentées au paragraphe II3 interdisent certes les recouvrements entre piliers, mais autorisent des rapprochements bord à bord entre piliers à des distances arbitrairement petites, jusqu'à la limite du contact (distance bord à bord de 0 nm). A cause des défauts de résolution, il est donc impossible de fabriquer les distributions désordonnées telles quelles. Il faut nécessairement imposer une condition de distance minimale entre piliers voisins. Cependant, nous avons vu au chapitre II que ce paramètre devait être minimisé pour maximiser les degrés de liberté de déplacement et éviter de dégrader les performances d'absorption (voir paragraphe II51). Nous avons donc souhaité dans un premier temps estimer les distances minimales que l'on pouvait atteindre sur nos échantillons.

Pour ce faire, nous avons conçu un échantillon préparatoire. Le masque de cet échantillon est présenté en *Figure 86*.

Il est constitué de réseaux périodiques dont la période est choisie pour donner une distance bord à bord Δ des piliers, variable entre 20 nm à 90 nm par pas de 10 nm, puis de 100 à 200 nm par pas de 20 nm. Les piliers sont de diamètre constant sur chaque réseau. Nous montrerons par la suite au paragraphe III42 les résultats obtenus sur cet échantillon préparatoire. Nous indiquons simplement ici que le réseau périodique constitué de piliers voisins de 20 nm a pu être correctement fabriqué et donc que la valeur de 20 nm de distance minimale a été retenue à l'issue de cet échantillon de test.

En ce qui concerne le protocole de fabrication, la résine CSAR-62 est déposée sur la bicouche plane Or/SiO₂ par centrifugation. Nous souhaitons fabriquer des piliers de hauteur $h=100$ nm de hauteur. L'épaisseur de résine souhaitée est donc $h_{\text{résine}}=300$ nm, compte tenu de la discussion précédente. L'échantillon est placé sur un plateau tournant dont la vitesse de rotation est contrôlable. On dépose une petite quantité de résine visqueuse sur l'échantillon et on démarre la rotation. Plus la vitesse de rotation est élevée, plus la quantité de résine éjectée du plateau par force centrifuge est importante et plus l'épaisseur de résine restante est faible. L'épaisseur de 300 nm est obtenue par une recette dans laquelle le plateau tourne pendant 15 s à 3500 tours par minute avec une accélération de 1000 tours/min/s avec un capot fermé puis avec une vitesse de 500 tours par minute et une accélération de 1000 tours/min/s avec le capot ouvert. Un promoteur d'adhérence HMDS est ajouté au préalable entre le SiO₂ et la résine CSAR-62. Ensuite, l'échantillon est placé sur une plaque chauffante à 150°C pendant 1 minute pour favoriser l'évaporation des solvants de la résine. L'intérêt de fermer le capot dans un premier temps est

de protéger la résine durant la rotation afin de limiter au maximum l'évaporation des solvants de la résine dans l'air ambiant. Ensuite, le capot est ouvert pour éviter une accumulation de résine sur les bords.

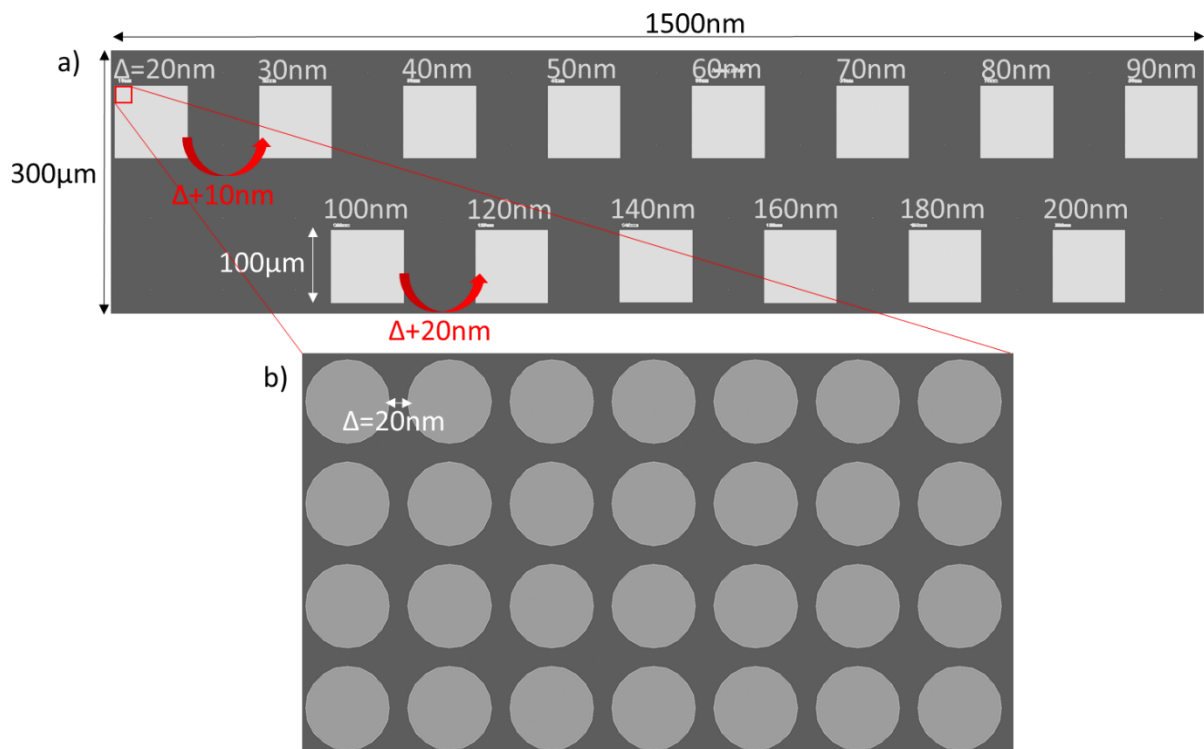


Figure 86 a) Masque complet de l'échantillon préparatoire de test de distance minimale b) Zoom sur la distribution de paramètre $\Delta=20$ nm

A l'étape d'écriture, cette résine est soumise à un faisceau d'électrons collimaté et focalisé. Un programme calcule l'ensemble des positions que doit parcourir le faisceau pour obtenir les nanostructures aux positions souhaitées, regroupées dans ce qu'on appelle le masque de l'échantillon, dont la conception fera l'objet du paragraphe III.3. Cette étape de fabrication a été faite systématiquement par les ingénieurs de salle blanche, notamment Yves Deblock et François Vaurette.

La révélation est effectuée en plongeant l'échantillon pendant 1 min 30 s dans une solution contenant un mélange de 1/3 de MIBK et 2/3 d'isopropanol (IPA, alcool).

III.2.2 Etapes d'évaporation sous vide

Nous commençons à partir du substrat de verre (SiO_2). Ce substrat est nettoyé par immersion dans un bain d'acétone, puis d'isopropanol et séché sous flux d'azote. Enfin, son aspect est observé au microscope optique pour contrôler l'absence d'impuretés.

Les couches d'or sont déposées sur l'échantillon à deux étapes différentes de la fabrication par le procédé d'évaporation sous vide. Le principe de fonctionnement de cette technique est représenté sur le schéma de la Figure 87.

L'ensemble de la procédure est réalisé dans une chambre à vide (typiquement $10^{-7}/10^{-8}$ mbar) qui est créé par une pompe représentée à droite sur le schéma. Un filament de tungstène chauffé sert de source d'électrons (effet thermoïonique) dont l'énergie va servir à son tour de source de chaleur. Ces électrons sont accélérés par l'application d'une haute tension (10 kV) et focalisés par des aimants en direction du creuset (appelé source sur le schéma) contenant une charge solide d'or de très grande pureté (de l'ordre de 99,99% dans notre cas). Sous l'effet du bombardement électronique de cette charge, l'or chauffe et fond et enfin s'évapore en direction de l'échantillon. Une partie des particules du gaz d'or se dépose par condensation sur la cible à température ambiante. Ce processus de dépôt par évaporation n'est pas très directif. Toutefois, la grande distance entre le creuset et l'échantillon garantit que l'or qui se dépose sur l'échantillon provient de la direction verticale.

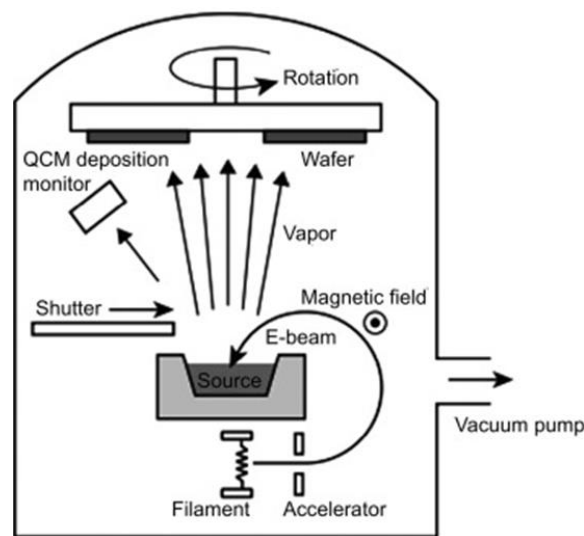


Figure 87 Schéma du dispositif de fabrication par évaporation. Reproduit de [95]

La fabrication de notre échantillon commence par le dépôt d'une première couche de 100 nm d'or sur le substrat de verre selon la procédure décrite précédemment. Une deuxième évaporation est effectuée pour former les motifs des piliers sur la couche séparatrice de SiO_2 . Etant donné la faible adhérence entre l'or et le SiO_2 et la fragilité des motifs, une couche d'accroche de 5 nm de titane est évaporée à la surface du SiO_2 avant l'évaporation de la couche d'or des piliers. Avant chaque dépôt, un bombardement d'ions d'argon est effectué pour nettoyer la surface du substrat et de la couche interstitielle de SiO_2 d'éventuelles espèces chimiques indésirables.

Ces deux étapes de fabrication ont été effectuées systématiquement par les ingénieurs de salle blanche, notamment Marc Dewitte et Annie Fattorini. Une vitesse de dépôt typique pour les deux couches d'or est 0,5 nm/s et 0,2 nm/s pour la couche de 5 nm de titane. L'épaisseur du dépôt est contrôlée en direct à l'aide d'un quartz (appelé QCM pour Quartz Crystal Microbalance sur la Figure 87).

III23 Croissance de la couche diélectrique par procédé PECVD

Pour la couche intermédiaire de SiO_2 , nous utilisons une technique de dépôt en phase vapeur assisté par plasma (PECVD en anglais pour « Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition »). Elle consiste à former le matériau SiO_2 par une réaction chimique entre des gaz injectés dans une chambre de dépôt. Cette étape est décrite sur la *Figure 88*.

Tout d'abord, le vide est effectué dans la chambre par pompage. Les gaz résiduels encore présents dans la chambre sont purgés par un flux d'azote inerte de 400 sccm. Cette procédure de pompage/purge est répétée de manière à diluer les gaz réactifs présents dans la chambre. Ensuite, deux flux de SiH_4/N_2 et N_2O dits précurseurs sont introduits dans la chambre à 150 et 700 sccm respectivement et sont réduits sous forme de plasma par décharge électrique de 20 W au niveau d'une électrode (appelée « RF energized electrode » sur la *Figure 88*). La décharge électrique ionise une partie des atomes des gaz qui se comportent alors comme des radicaux libres très réactifs. La réaction chimique entre le silicium et l'oxygène contenus dans les deux gaz est alors possible, ce qui forme le SiO_2 . Le SiO_2 crée des liaisons physiques avec l'échantillon (adsorption) et se dépose ainsi progressivement à sa surface, sous une pression de 1000 mTorr. Durant ce processus, la température de l'échantillon est portée à 300°C pour favoriser une répartition plus homogène du SiO_2 . La durée du dépôt est ajustée à 18 s pour former l'épaisseur de 20 nm souhaitée. Ensuite, l'échantillon cesse d'être chauffé et se refroidit lentement jusqu'à la température ambiante pour éviter tout choc thermique. Le SiO_2 fabriqué de cette manière est sans structure cristalline définie (amorphe).

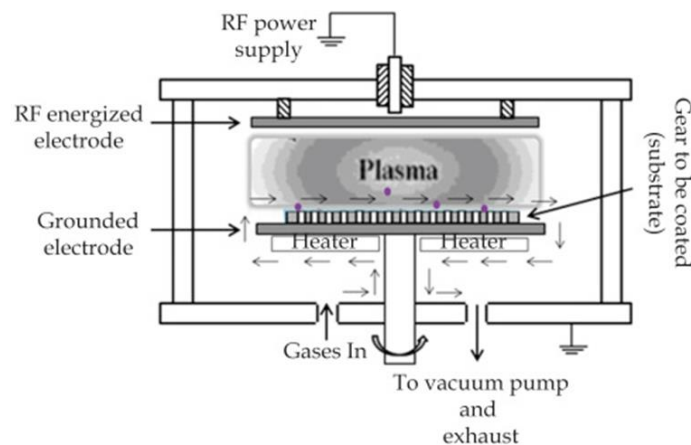


Figure 88 Schéma du dispositif de croissance de couche par PECVD. Reproduit de [96]

Il est à noter qu'avant le dépôt de SiO_2 sur l'échantillon, une première étape dite « de conditionnement » consiste à ajouter une couche protectrice dans la chambre si le dépôt précédent a été fait avec des espèces chimiques différentes de celles que nous utilisons. La chambre PECVD que nous utilisons peut former deux types de dépôts chimiques : les nitrures (typiquement : le composé SiN), et les oxydes (typiquement : notre SiO_2). Si le dépôt précédent a consisté à former du SiN , une partie de ce SiN s'est déposé sur les parois, qu'il s'agit donc de recouvrir afin que les espèces chimiques associées ne polluent pas le dépôt de SiO_2 . Pour éviter toute contamination, on pratique, en l'absence d'échantillon, un dépôt

préalable de la même espèce que celle qui sera déposée ensuite (dans notre cas : le SiO_2). Cette couche de conditionnement préliminaire est en général de 50 nm d'épaisseur, formée par le procédé PECVD que nous avons décrit.

III24 Méthode de lift off

Afin d'obtenir la structure souhaitée, il s'agit enfin de retirer la résine et le surplus de métal déposé sur la résine. On appelle cette étape le lift-off (décollage), dont le principe est illustré en *Figure 89a*). Après le dépôt d'or par évaporation, une partie de l'or se dépose sur la résine et l'autre partie dans les cavités formées après révélation (voir *Figure 89a*) gauche). L'étape de lift off consiste à dissoudre la résine. De cette façon, l'or qui s'est déposé sur la résine est retiré avec cette dernière, et seules les particules d'or s'étant déposées à l'intérieur des cavités restent sur l'échantillon pour former les nanostructures (voir *Figure 89a*) droite). Le dépôt de l'or par évaporation (voir paragraphe III22) assure que l'or se dépose au fond des cavités et non sur leurs parois. Comme la résine est trois fois plus épaisse que le dépôt d'or, il existe donc dans les cavités pratiquées dans la résine une interface résine/air de hauteur $2h$: seule cette interface permet la mise en contact de la solution avec la résine, comme le montre la *Figure 89a*). Dans ces conditions, le décollage de la résine est donc un processus relativement long. Pour faciliter le décollage, une solution consiste à adopter un profil de résine dite « en casquette » (voir *Figure 89b*)).

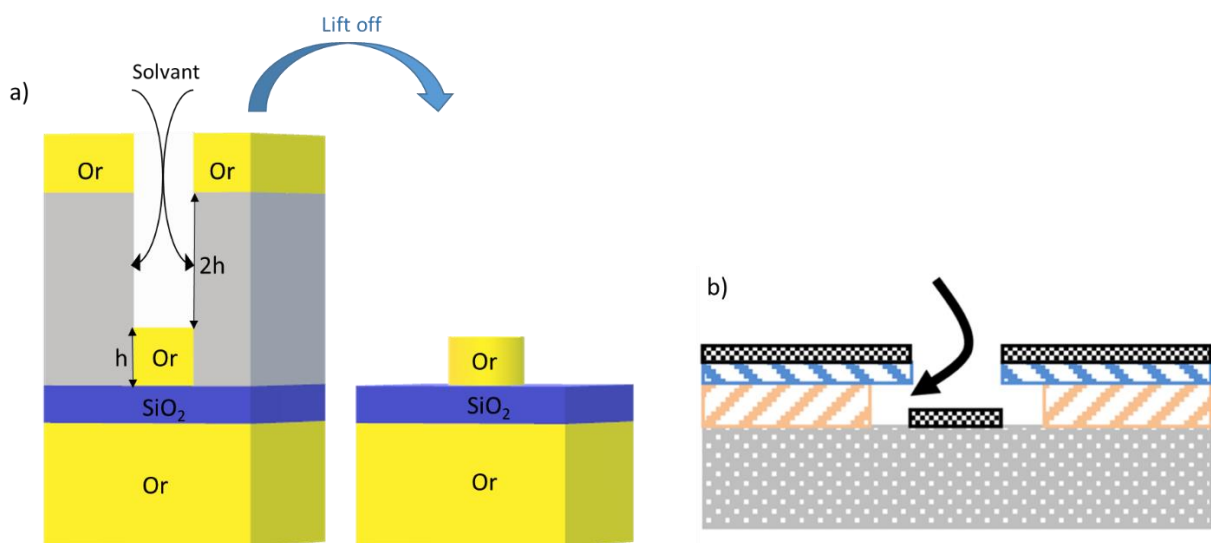


Figure 89 a) Principe de lift off. Les flèches noires indiquent l'action du solvant b) Profil de résine en casquette pour faciliter le lift-off. La flèche indique l'action du solvant. Reproduit de [94]

Dans ce procédé, deux résines différentes sont employées : l'une sert à définir l'ouverture donc la taille et la forme des nanostructures, et l'autre est une résine dont la zone exposée est plus importante que la première pour une même dose d'exposition. Ainsi, après exposition, une partie de la résine supérieure surplombe la seconde, à la manière d'une casquette. De cette façon, le volume d'interaction résine/solution est augmenté par rapport à une seule résine dont les flancs seraient relativement verticaux. Malheureusement, cette technique est impossible dans notre cas car nous souhaitons fabriquer des ensembles de particules désordonnées de faibles distances de séparation, si bien que l'emploi de

résines où les effets de diffusion sont limités sera nécessaire pour éviter la fusion des motifs adjacents, comme illustré en *Figure 85b*).

Ainsi, il est nécessaire dans notre cas de plonger l'échantillon dans une solution de SVC14 pendant au moins deux heures en chauffant la solution à 70°C. Si le décollage est insuffisant, on utilise un bain d'ultrasons à la fréquence de 35 kHz pour aider mécaniquement le décollage de la résine et du film d'or. On peut ensuite caractériser l'échantillon obtenu grâce aux outils qui seront décrit au paragraphe III4.

III3 Génération des masques pour la lithographie électronique

Pour la génération des distributions hyperuniformes, nous avons mis en place une procédure MCMC (Markov Chain Monte Carlo, voir paragraphe II32) qui calcule la position des piliers dans des distributions contenues dans un domaine d'espace centré autour d'une origine arbitraire de coordonnées. Pour faire le lien entre ces coordonnées et les zones d'exposition sur l'échantillon fabriqué, il est nécessaire de passer du repère arbitraire des distributions à un repère lié à l'échantillon. Ceci est fait en deux étapes : d'abord, les différents éléments de l'échantillon sont agencés entre eux dans une architecture qui s'appelle le masque. Ensuite, l'origine arbitraire du masque est affectée à une position sur l'échantillon (voir *Figure 90*).

La réalisation des masques a été faite via un code Matlab. Les masques que nous avons construits sont composés de différentes distributions de piliers dont on cherche à mesurer les propriétés, ainsi que des repères textuels qui permettent d'orienter l'échantillon et de se repérer plus facilement dans les différentes distributions. Ces repères textuels sont fabriqués de la même manière que les piliers. Typiquement, les échantillons que nous allons fabriquer sont organisés en lignes/colonnes. Ainsi, on attribue un numéro à chaque ligne et une lettre à chaque colonne pour se repérer sur l'échantillon - comme sur un échiquier. Chaque élément (les indices textuels ainsi que les piliers) est représenté sous forme d'un polygone décrit par les coordonnées de ses sommets. Une procédure avait été développée pour calculer les coordonnées des sommets du polygone associé aux symboles textuels de l'échantillon dans son repère propre. Ces différents éléments sont agencés dans une architecture composée de niveaux hiérarchiques qui permettent d'organiser les éléments entre eux ; le dernier niveau contient le masque entier. Enfin, le code Matlab enregistre le fichier contenant les coordonnées de chaque élément dans un format lisible par le logiciel Layout Editor, qui est le logiciel qui permet de dialoguer avec la machine qui réalise l'écriture de l'étape de lithographie. Pour réaliser l'écriture, l'origine du repère du masque est affectée à une position sur l'échantillon. Les positions successives du faisceau électronique sont alors calculées.

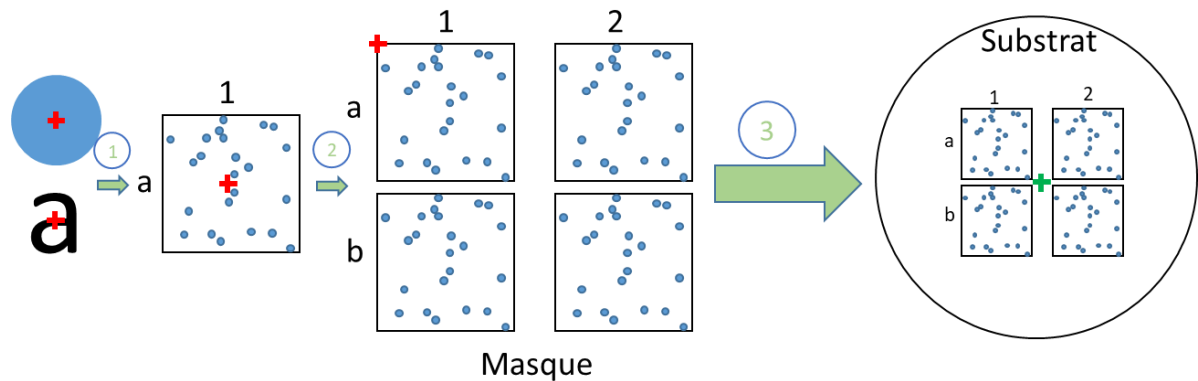


Figure 90 Principe de l'architecture des échantillons pour l'exposition lithographique : d'abord un masque est généré à partir de l'agencement des éléments dans leur repère propre (étapes 1 et 2 ; l'origine du repère est représentée par les croix rouges). Ensuite, le repère associé au masque est affecté à une position de l'échantillon (croix verte) pour réaliser l'exposition (étape 3)

Nous allons désormais présenter la conception et les objectifs des différents échantillons que nous avons fabriqués. Afin d'étudier le comportement d'absorption des distributions désordonnées, nous avons souhaité commencer par étudier expérimentalement des distributions périodiques. Le but était de déterminer les dimensions géométriques de la structure de manière à obtenir une résonance à 800 nm, qui est la fréquence centrale d'excitation du laser pour laquelle le montage expérimental est optimisé. La stratégie adoptée a consisté à balayer les dimensions géométriques de la structure de manière à observer quelles sont celles qui donnent l'absorption la plus intense pour une excitation du laser $\lambda=800$ nm. Compte tenu des simulations réalisées au chapitre précédent, nous savons que les deux paramètres qui influent le plus fortement sur la position spectrale de la résonance sont le diamètre des piliers d et l'épaisseur de la couche diélectrique h_d . Nous avons donc choisi de faire varier le diamètre des piliers. En effet, le procédé PECVD ne nous permet de réaliser que des couches homogènes de SiO_2 . Ainsi, faire varier ce paramètre nécessiterait de réaliser un échantillon supplémentaire pour chaque nouvelle valeur de h_d . C'est la raison pour laquelle nous avons choisi de faire varier le diamètre des piliers au sein d'un même échantillon par contrôle de la zone d'exposition de la résine. Le masque de ce premier échantillon sous le logiciel LayoutEditor est présenté en *Figure 91a*).

Il est organisé de la manière suivante. Tout d'abord, on fixe les valeurs de l'épaisseur du plan de masse h_m , de l'épaisseur du diélectrique h_d et de l'épaisseur des piliers h à $(h_m, h_d, h) = (100, 20, 100)$ nm. Ce sont les paramètres qui donnent une absorption unitaire pour un diamètre d et une période p de 126 et 520 nm respectivement (hormis pour la valeur de h). Le diamètre d est quant à lui optimisé en simulation par étude paramétrique pour chaque valeur de période, de manière à se placer dans chaque cas à la condition de couplage critique. Cela permet de maximiser l'absorption de chaque réseau et donc l'intensité du signal mesuré. Nous précisons que l'épaisseur h des plots est fixée à $h=100$ nm et non $h=60$ nm comme dans la structure optimale du chapitre II, pour respecter un rapport d'aspect (le rapport entre le diamètre et la hauteur des piliers) d'environ 1. Cependant, nous avons vu au chapitre II que ce paramètre n'exerçait qu'une faible influence sur la condition de couplage critique, nous nous attendons

à ce que cet écart induise une différence mineure du comportement d'absorption par rapport aux résultats numériques.

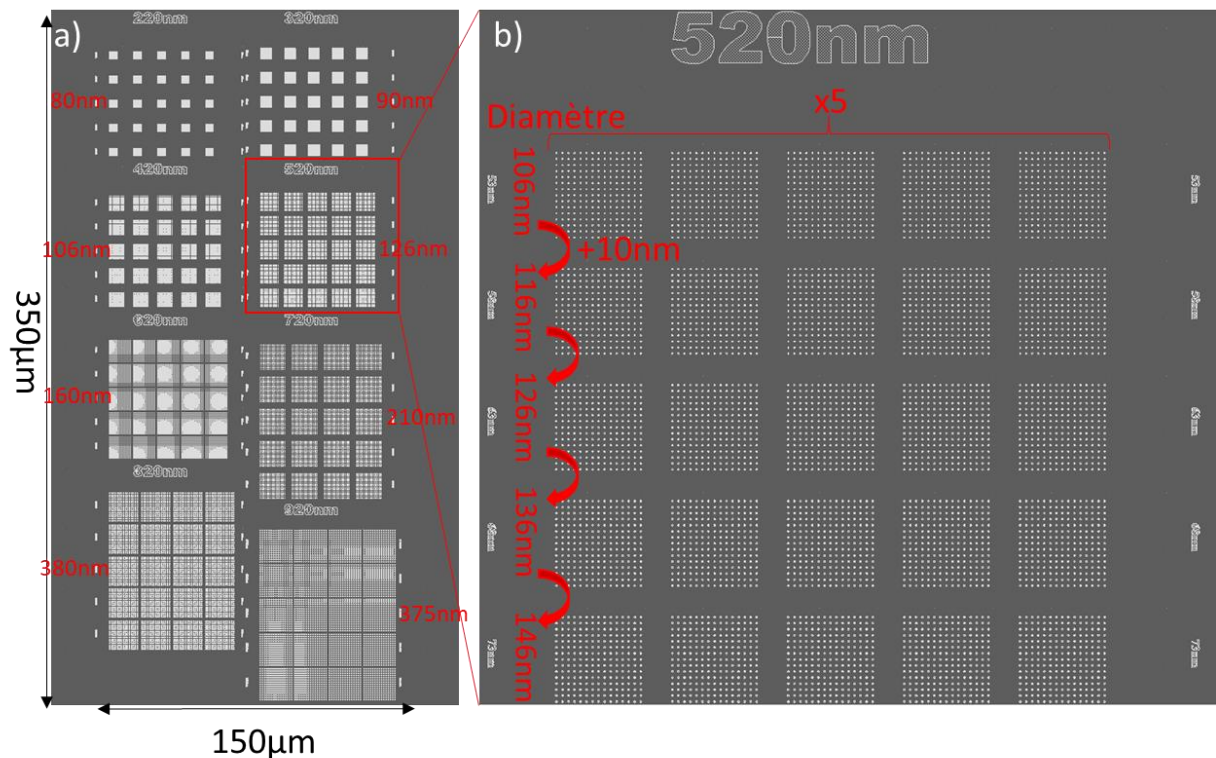


Figure 91 a) Masque complet de l'échantillon périodique et b) Zoom sur le sous-domaine de période $p=520\text{ nm}$

L'échantillon périodique est composé de réseaux à maille carrée de 15×15 piliers. La période varie de 220 à 920 nm, et pour chaque période, 5×5 réseaux sont construits (voir Figure 91b)). D'une ligne à l'autre, le diamètre varie de 10 nm en 10 nm. La ligne centrale est constituée de piliers dont le diamètre est égal à celui qui garantit la condition de couplage critique pour cette valeur de période. Chaque réseau est ensuite répété cinq fois en ligne, au cas où les réseaux finissent par s'abimer par le chauffage de la structure dû à la dissipation ohmique au cours des mesures, et pour garantir la robustesse aux différentes dégradations (transport, manipulation). La valeur du diamètre des distributions centrales pour chaque valeur de période est indiquée sur la Figure 91a).

Pour cette fabrication initiale, il s'est agi de déterminer la dose d'exposition minimale (voir discussion du paragraphe III21). Ce paramètre est en effet difficilement estimable a priori car il dépend de manière complexe de différents paramètres comme l'empilement et l'épaisseur des différentes couches et de la nature de la résine. Il est donc nécessaire de déterminer la dose minimale empiriquement. Ainsi, pour cet échantillon, nous avons répété le motif entier de la Figure 91a) 25 fois sur le substrat, pour des valeurs de dose variant de 160 à 640 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ par pas de 20 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$. Nous montrerons les résultats de ce test de fabrication au paragraphe III42, qui nous ont permis de retenir la dose de 560 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$. Les résultats de mesure de cet échantillon seront quant à eux présentés et discutés au paragraphe III52.

Les résultats de mesure sur ce premier échantillon nous ont permis de concevoir un second échantillon, cette fois-ci composé de cellules désordonnées. L'objectif poursuivi avec ce deuxième échantillon est de vérifier le comportement d'absorption en fonction de la quantité de désordre et pour des densités de piliers différentes. Nous avons en effet vu au chapitre II que le paramètre de la densité jouait un rôle important vis-à-vis de la quantité de désordre. L'objet de cet échantillon est donc d'étudier l'interaction entre ces deux paramètres sur les propriétés d'absorption.

Compte tenu de la discussion du paragraphe III21, nous avons généré les distributions désordonnées en introduisant une condition de distance minimale bord à bord de 20 nm dans la procédure de calcul des positions des piliers. La Figure 92 montre le masque de cet échantillon ainsi que des parties de certaines distributions de densité et d'écart type relatif variables.

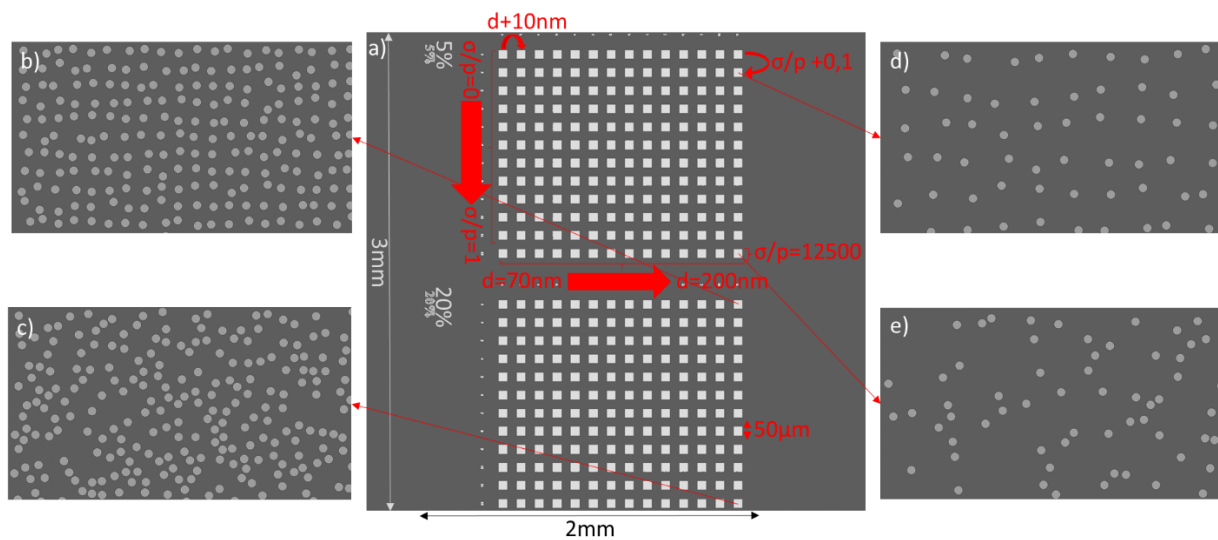


Figure 92 a) Masque de l'échantillon désordonné et Zooms sur les cellules de piliers de diamètre $d=200$ nm et de densité 20% pour un écart type relatif σ/p de b) 0,1 et c) 12500 et de densité 5% et $\sigma/p=$ d) 0,1 et e) 12500

On fixe la densité et les trois paramètres $(h_m, h_d, h) = (100, 20, 100)$ nm comme dans l'échantillon périodique. La densité est fixée à deux valeurs différentes, 5 et 20%. Pour ces deux valeurs de densité, on construit des domaines de taille $L^2=50 \times 50 \mu\text{m}^2$ composés de distributions de diamètre et de période fixés où l'on fait varier la quantité σ/p de 0 à 1 par pas de 0,1, puis à une valeur $\sigma/p=L/4=12500$ (voir Figure 92a)). Cette dernière valeur d'écart type relatif est destinée à générer des distributions aléatoires équivalentes à la procédure binomiale décrite au paragraphe II31, représentée par un paramètre $\sigma/p=\infty$ dans les simulations. Enfin, on fait aussi varier dans cet échantillon le diamètre des piliers de 70 à 200 nm d'une colonne à l'autre par pas de 10 nm, et la période est ajustée pour obtenir la bonne densité de pilier pour chaque valeur du diamètre. Plusieurs diamètres de piliers par distribution ont été envisagés de manière à pallier les incertitudes de résolution finales. Nous présenterons les résultats expérimentaux obtenus sur cet échantillon au paragraphe III52. Cet échantillon est fabriqué pour une dose de $560 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, qui est la dose minimale identifiée pour l'échantillon précédent.

III4 Caractérisation géométrique des échantillons

Dans la suite, nous allons présenter les outils que nous avons employés pour mesurer les dimensions critiques de nos échantillons : l'épaisseur de la couche de SiO₂, et le diamètre des piliers.

III41 Observation en microscopie électronique

Le premier outil qui nous permet de contrôler la fabrication des échantillons est le microscope électronique à balayage (MEB). Il s'agit d'un outil d'imagerie dont le principe de fonctionnement repose sur la détection des électrons issus d'une source après interaction avec un matériau. Les électrons de la source sont qualifiés de « primaires ». L'analyse des propriétés des électrons permet ensuite de reconstituer la topographie du matériau. Comme pour la lithographie électronique, la longueur d'onde des électrons, déterminée par la relation (38), permet de travailler avec des faisceaux d'électrons très fins ce qui permet d'atteindre une résolution très fine.

Les électrons sont produits par effet thermoïonique, et le faisceau est collimaté et focalisé par un système de lentilles électroniques. La taille du faisceau est fixe et il est dirigé en incidence normale sur l'échantillon placé dans une chambre à vide. Les électrons sont accélérés par une tension électrique avant d'arriver sur l'échantillon. Le faisceau est orienté par un ensemble de bobines pilotées en tension ce qui permet de balayer la zone de l'échantillon à imager, d'où l'appellation « à balayage » de ce système d'imagerie. Il existe principalement deux types d'électrons issus de l'interaction des électrons incidents (dits « primaires »), avec l'échantillon : les électrons dits « rétrodiffusés » sont des électrons primaires dont la trajectoire est simplement déviée par l'interaction avec la matière de l'échantillon. Il existe aussi des électrons dits « secondaires », qui sont eux des électrons issus de l'échantillon lui-même qui ont été arrachés par les électrons primaires. Ces deux types d'électrons sont analysés par des détecteurs différents, ce qui permet de reconstruire l'image de la partie de l'échantillon éclairée.

Nous utilisons le MEB à la fois en « survolant » l'échantillon de manière à vérifier l'état général de l'échantillon et notamment si les piliers ont pu être formés sur l'ensemble de la surface, et en zoomant sur certaines parties spécifiques pour mesurer avec précision les dimensions caractéristiques des distributions réalisées. Les images dont nous allons désormais discuter ont été obtenues avec le concours de l'ingénieur Christophe Boyaval.

L'imagerie MEB nous a permis de déterminer la dose d'exposition de nos échantillons. Comme expliqué au paragraphe III3 précédent, nous avons testé ce paramètre au cours de la fabrication de l'échantillon périodique. Le masque de la *Figure 91a*) a été fabriqué pour un paramètre de dose variable, et nous souhaitons identifier la valeur minimale qui permet de réaliser la fabrication de manière satisfaisante. Compte tenu de la discussion du paragraphe III21, on s'attend à ce que de nombreux piliers ne soient pas formés en dessous d'une certaine valeur de dose. Quelques images de cet échantillon obtenues au MEB en fonction de la valeur de la dose sont présentées en *Figure 93* :

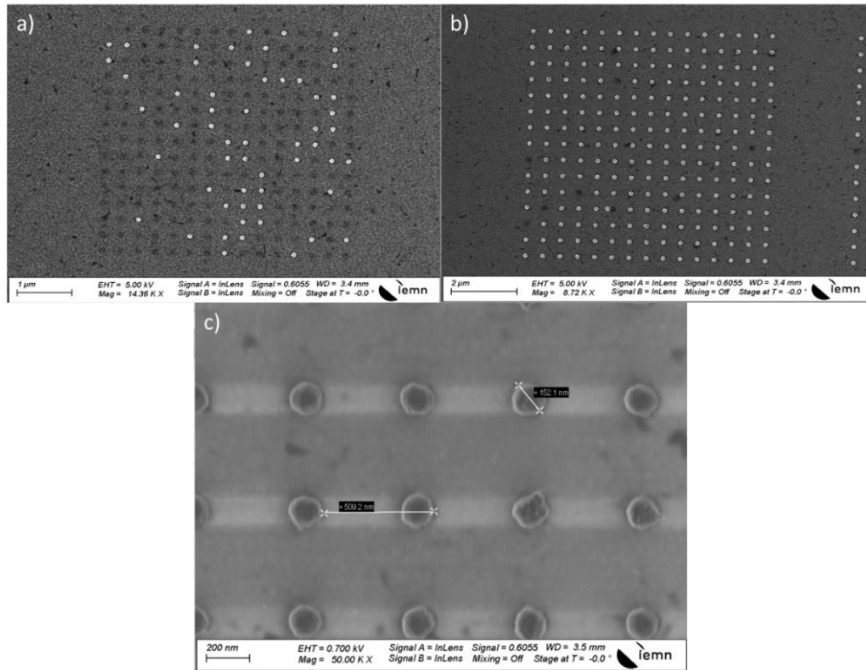


Figure 93 Images MEB de réseaux périodiques de période $p=520$ nm, $d=106$ nm, pour les doses a) 460 et b) 520 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ et c) Zoom sur une partie du réseau de paramètres $p=520$ nm, $d=126$ nm, pour la dose 560 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$

Les paramètres caractéristiques de l'imagerie électronique sont indiqués sur les images : EHT, en kV, correspond à la tension d'accélération des électrons, Mag, sans unité, correspond au rapport de la taille de l'image sur l'écran en convention polaroid par rapport à la taille réelle de l'échantillon représenté sur l'image, Signal A et B sont les capteurs à électrons utilisés pour l'image particulière. Le détecteur « InLens » détecte les électrons secondaires, tandis que le détecteur « SE » collecte les électrons rétrodiffusés. Le paramètre WD (pour Working Distance), correspond à la distance entre la source du faisceau et l'échantillon, et Stage at T, en degrés, correspond à l'inclinaison du plan de l'échantillon par rapport à la normale. Dans certaines images, on indique aussi la taille sur l'échantillon d'un pixel de l'image.

Nous pouvons constater en *Figure 93a*) que pour une dose de 460 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$, le faisceau e-beam ne semble pas pouvoir creuser suffisamment la résine. Certains plots peuvent tout de même se former, ce qui signifie que la dose est presque suffisante. A 520 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ (*Figure 93b*)), la dose n'est pas encore suffisante, mais presque tous les plots ont été formés : la dose minimale qui permet de former entièrement les plots est 540 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$. Pour nous accorder une légère marge, nous retenons la dose de 560 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ comme la dose satisfaisante pour notre fabrication. Un zoom sur la distribution de période 520 nm et de diamètre 126 nm est montrée en *Figure 93c*). Ici, les piliers sont tous formés. Il est possible qualitativement de vérifier la forme géométrique des piliers, qui n'est pas parfaitement circulaire mais au contraire légèrement ellipsoïdale et anguleuse sur les bords. Nous caractériserons au paragraphe III43 les dimensions des piliers obtenus pour cette dose.

De même, l'imagerie MEB a pu permettre de contrôler la fabrication de l'échantillon désordonné. La *Figure 94a*) montre une image MEB prise en haut à gauche de la distribution de densité 20% et de

diamètre 200 nm de l'échantillon désordonné. La *Figure 94b*) représente la même zone, sur le masque cette fois (l'image est exportée du logiciel Layout Editor).

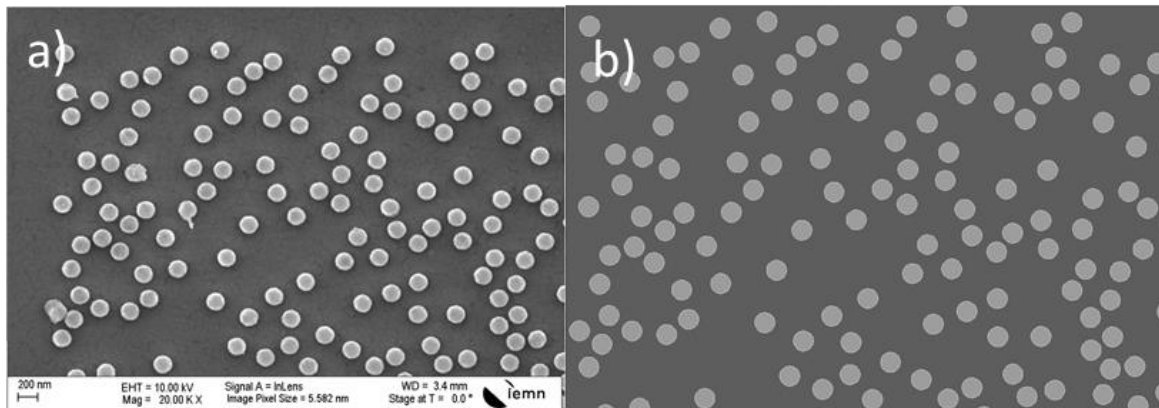


Figure 94 a) Zoom sur le coin en haut à gauche de la distribution de densité 20%, $d=200$ nm, $\sigma/p=12500$ et b) Même zone sur le masque

Contrairement aux distributions périodiques où il est facile de savoir si un pilier « manque » dans la distribution, le contrôle de la bonne formation des piliers est plus complexe sur les échantillons désordonnés car il est impossible de savoir à priori si une zone particulière devrait ou non contenir un pilier. On doit donc prendre une image MEB sur une zone identifiable de l'échantillon, et vérifier sur le masque si chaque pilier a bien été formé. Sur une zone d'une centaine de piliers, il semble n'y avoir pas d'élément manquant si l'on compare les *Figure 94a)* et *b)*, ce qui valide ce choix de dose ($560 \mu\text{C}/\text{cm}^2$). Nous constatons également que les piliers sont de forme plus circulaire que ceux de la *Figure 93* issus de l'échantillon périodique. Pour autant, ceci n'est pas représentatif d'une amélioration de la résolution dans la mesure où le diamètre est plus important que dans le cas de l'échantillon périodique.

Une possibilité supplémentaire pour vérifier la géométrie consiste à pencher l'échantillon pour évaluer la forme des piliers en trois dimensions (on fait varier le paramètre « Stage at T »). Une image d'un réseau périodique de piliers tirée de l'échantillon désordonné de la *Figure 92* est montrée en *Figure 95* pour un angle de $38,3^\circ$ par rapport à la verticale. Pour ce type d'image, on utilise le détecteur d'électrons rétrodiffusés appelé SE2.

L'angle d'observation permet d'évaluer la forme des piliers dans la direction transverse par rapport à celle de la surface de l'échantillon. Nous pouvons remarquer qu'il est difficile d'identifier clairement les bords verticaux des piliers sur l'image MEB, ce qui suggère que ces bords ne sont pas absolument verticaux. Les piliers sont donc d'aspect légèrement conique. Néanmoins, la conséquence de ce léger défaut de fabrication ne semble pas être un élément crucial dans le comportement d'absorption des distributions dans la mesure où celle-ci dépend peu de la hauteur des piliers (voir chapitre II).

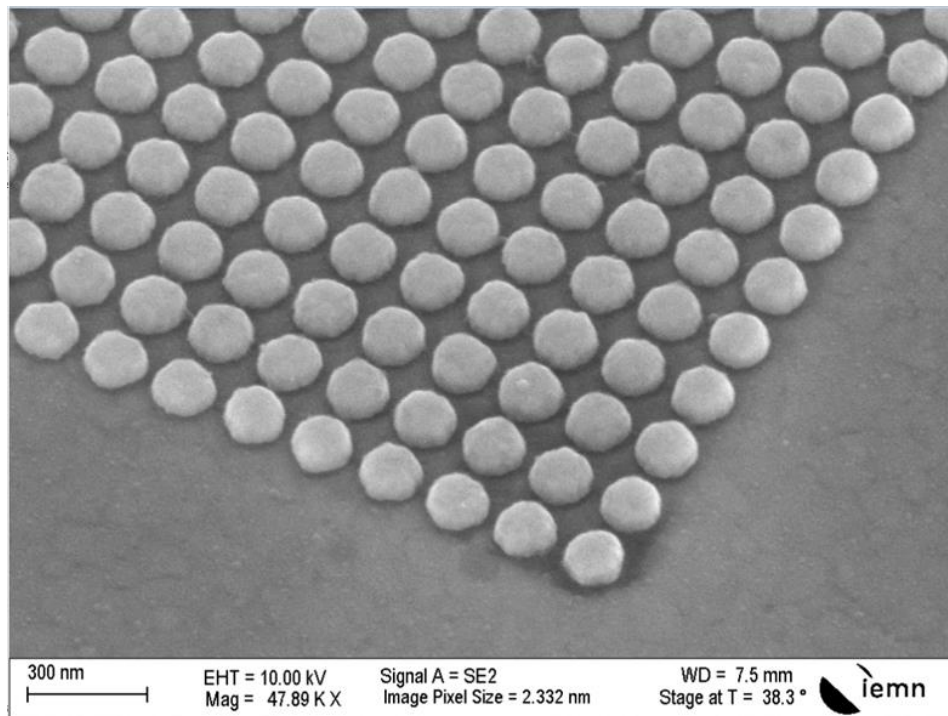


Figure 95 Image MEB inclinée d'un réseau de pilier de l'échantillon désordonné

Ces étapes de caractérisation de la fabrication de l'échantillon sont une bonne indication de l'état général de l'échantillon et sont parfois suffisantes, comme pour le choix de la dose. En revanche, il est bon de pouvoir caractériser plus finement les dimensions obtenues sur l'échantillon, ce que nous développerons au paragraphe III43.

III42 Détermination de l'épaisseur du diélectrique

Comme évoqué au chapitre I, l'épaisseur de la couche de SiO_2 est critique, car sa valeur détermine l'intensité du couplage entre plasmons. Vu sa faible épaisseur, une petite variation de quelques nm peut induire des variations spectrales importantes sur la fréquence et l'intensité de l'absorption, comme l'ont vérifié les simulations du chapitre II. Pour mesurer l'épaisseur de cette couche diélectrique, nous avons utilisé la technique de l'ellipsométrie.

Cette technique repose sur la mesure d'un faisceau de lumière réfléchi dans la direction spéculaire par l'échantillon. Pour ce faire, on a recours à excitation sous incidence oblique, à 20° par rapport à la normale. La polarisation des champs incident et réfléchi peut être représentée par deux composantes : une composante dans le plan d'incidence appelée en général p, et une composante dans le plan orthogonal, appelée s. Ces composantes sont caractérisées par deux coefficients de réflexion indépendants entre eux, qu'on peut noter $r_p = E_{rp}/E_{ip}$ et $r_s = E_{rs}/E_{is}$ dans la direction spéculaire. Les grandeurs E_i et E_r sont respectivement les amplitudes du champ électrique pour le champ incident et réfléchi, et les indices p ou s indiquent si la composante est p ou s. Sur le plan technique, l'ellipsomètre est composé de détecteurs qui permettent de mesurer le coefficient ρ caractérisant le champ réfléchi par l'échantillon dans les deux composantes p et s du champ, qui est défini comme :

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \tan(\psi) * e^{j\Delta} \quad (40)$$

Les angles ψ et Δ sont appelés les angles ellipsométriques : $0 < \psi < 90^\circ$ et $0 < \Delta < 360^\circ$, ils dépendent de la composition de l'échantillon sous test (épaisseur, indice optique). En général, la détermination de la polarisation est effectuée par la rotation d'un polariseur analysant le champ réfléchi, pour obtenir l'information selon les deux composantes de polarisation s et p. L'ellipsomètre que nous utilisons repose sur l'emploi d'une barre de silice rendue biréfringente par une modulation piézoélectrique. La phase de chaque composante de la polarisation du faisceau réfléchi par l'échantillon est ainsi retardée par son passage dans la barre de silice de manière indépendante, ce qui permet une modulation de la polarisation. De cette façon, il n'est pas nécessaire de faire tourner le polariseur pour analyser l'état de polarisation, et d'autre part la modulation est effectuée à 50 kHz ce qui permet une acquisition rapide des résultats. L'ellipsomètre est dit « spectroscopique », car il effectue cette mesure en fonction de la longueur d'onde variant dans l'intervalle [1,5 ; 5] eV par pas de 0,1 eV. L'échantillon est modélisé dans le logiciel de traitement des données de mesures. On renseigne l'épaisseur et l'indice du matériau composant chaque couche de l'échantillon dans le domaine fréquentiel de la mesure. Dans notre cas, l'épaisseur de la couche d'or est de $h_m=100$ nm et l'épaisseur du SiO_2 est considérée comme un paramètre inconnu. La valeur de ρ est calculée théoriquement à partir de cette modélisation pour différentes valeurs de l'épaisseur de SiO_2 . Enfin, l'épaisseur de SiO_2 estimée par l'ellipsomètre est celle qui minimise l'écart entre le calcul théorique et les mesures expérimentales de Δ et ψ dans la gamme de fréquence. Nous avons systématiquement répété cette estimation à différents endroits de l'échantillon pour vérifier que l'épaisseur de la couche de SiO_2 soit bien homogène. La couche de SiO_2 a été mesurée pour chacun des deux échantillons périodique et désordonné. On a mesuré respectivement une couche de SiO_2 de $h_d=19$ nm et $h_d=22,5$ nm, ce qui semble un écart acceptable vis-à-vis de la dimension souhaitée de 20 nm. Néanmoins, ces écarts devront être pris en compte pour interpréter les résultats expérimentaux.

Nous avons également employé la technique de l'ellipsométrie pour mesurer systématiquement l'épaisseur de la couche de résine employée pour la lithographie électronique.

III43 Analyse statistique des échantillons fabriqués

Afin de permettre de mesurer plus précisément les dimensions caractéristiques de l'échantillon, le logiciel de traitement d'images ImageJ a été employé. Ce logiciel permet notamment la détection de formes à partir de l'analyse des couleurs d'une image, il est donc adapté à la détection des piliers de nos images MEB. Il est également possible de réaliser la détection de forme « à la main », en ajustant les cercles sur les piliers de manière à les recouvrir, et ensuite sauvegarder le fichier contenant les caractéristiques des cercles (périmètre, aire...). Les informations du MEB, notamment la taille du pixel de l'image, ou la barre d'échelle en bas à gauche nous permettent de faire le lien entre les dimensions de l'image sur lesquelles travaille ImageJ et les dimensions réelles. Ce traitement d'image nous a permis

aux piliers présents sur l'image MEB, et dont on peut extraire l'aire par ImageJ. Le diamètre de chaque pilier est calculé via $d = \sqrt{\frac{4A}{\pi}}$, où A est l'aire des cercles.

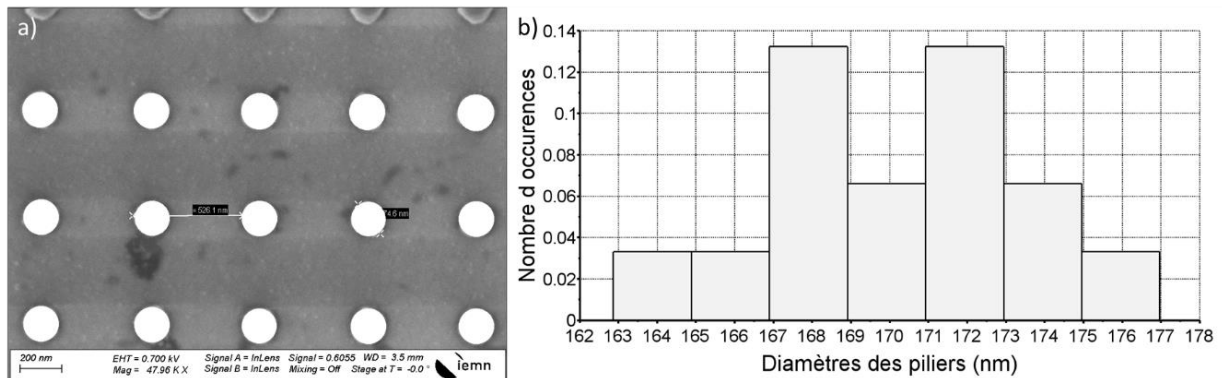


Figure 97 a) Image MEB après traitement par ImageJ et b) Histogramme des diamètres des piliers correspondant

Nous constatons que sur une distribution de seulement 15 piliers, il existe un écart de près de 15 nm entre les diamètres extrêmes. Ici, le diamètre moyen est de 170 nm environ, ce qui correspond à un surplus de diamètre de +25 nm par rapport aux dimensions visées, dû aux effets de proximité. Cet écart est stable à cette même dose : +22 nm, +24 nm, +24 nm et +25 nm pour les quatre autres distributions traitées.

Ce surplus doit être pris en compte pour l'interprétation des résultats de mesure. Il a aussi été pris en compte dans la conception de l'échantillon désordonné, fabriqué à la même dose, où les diamètres des cercles du masque ont été dessinés 30 nm moins grands que le diamètre réellement visé. La Figure 98a) montre le traitement d'images issu de l'image MEB de la Figure 94. La Figure 98b) montre quant à elle la distribution des diamètres des piliers correspondante.

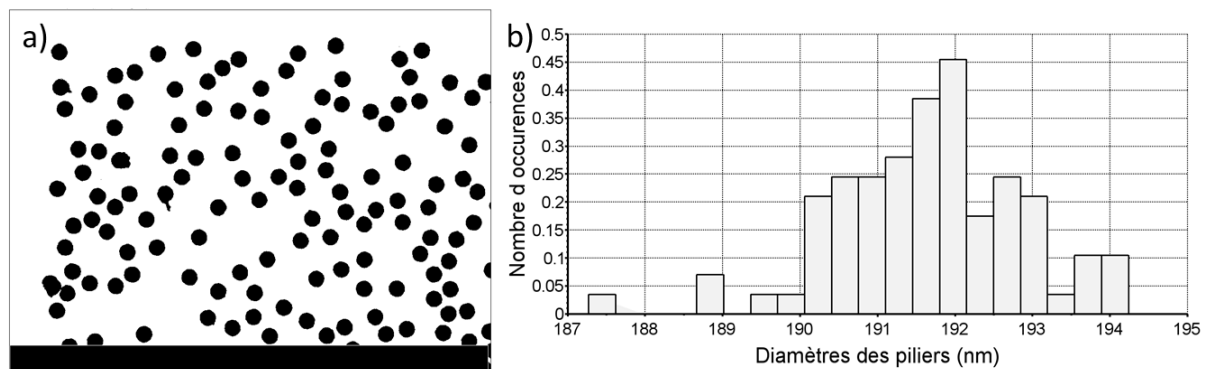


Figure 98 a) Traitement d'image pour détecter les piliers sur l'image MEB de la Figure 94 et b) Histogramme de la distribution des diamètres de piliers correspondant

Cette fois-ci, le contraste de couleur sur l'image MEB entre les piliers et le reste de l'échantillon est suffisant pour pouvoir détecter les formes de manière automatique. Le diamètre moyen pour cette distribution est de 192 nm au lieu des 200 nm visés initialement. L'écart entre ces diamètres a donc pu être réduit. Lorsque l'on analyse les diamètres des autres distributions, les écarts sont comparables et

environ égaux à -10 nm. La dispersion autour de la valeur moyenne est plus faible que pour l'échantillon précédent : l'écart type des valeurs de diamètre est de l'ordre de 1%.

Cette méthode d'analyse est assez fiable malgré quelques limitations. En premier lieu, il existe une certaine subjectivité due à l'opérateur qui réalise la détection des formes géométriques. En effet, que ce soit à la main en traçant les cercles pour les superposer aux images MEB, ou automatiquement en détectant les piliers par le contraste de couleur, les deux manières de procéder nécessitent de déterminer où se trouve le bord du pilier, en ajustant le cercle au-dessus de l'image ou en définissant la valeur du seuil à partir duquel la couleur est associée au pilier plutôt qu'aux couches du dessous : ce choix est en partie arbitraire puisque la couleur du pilier se distingue progressivement de celle de la surface de SiO₂ par un gradient qui ne permet pas de tracer une frontière nette. En second lieu, cette estimation repose sur l'assimilation de la section du pilier à un cercle parfait, ce qui n'est pas toujours le cas (cf *Figure 93c*). On a vu également que les piliers étaient en général d'aspect légèrement conique. Le diamètre n'est ainsi pas tout à fait défini, puisque la section du pilier dépend de la hauteur.

III5 Caractérisation optique des échantillons

Nous présentons les résultats de mesure et les méthodes utilisées. Le but est de confronter ces mesures expérimentales avec les résultats de simulation présentés au chapitre II. L'objectif est double : il s'agit d'une part de vérifier si les résultats obtenus sur des simulations de taille limitée sont confirmés sur de plus grandes distributions. D'autre part, cela permet de démontrer ou non la possibilité concrète de fabriquer les structures présentant les propriétés calculées en simulation.

III51 La spectroscopie de champ sombre en réflexion

Deux types de mesures ont été mis en place au cours de ce travail : une mesure par champ sombre d'une part et par caméra de phase d'autre part. Le banc de mesure correspondant se trouve à l'Institut Carnot de Bourgogne et les mesures ont été conduites par Thibault Deletang sous la direction de Benoît Cluzel. La source optique est un laser Ti:Sa en incidence normale sur l'échantillon et est polarisée linéairement. La fréquence centrale de ce laser est 800 nm. Le banc de mesure a été optimisé pour cette longueur d'onde ; cependant, la longueur d'onde du laser est accordable dans la gamme [700 ; 900] nm. Ainsi, le système est capable de détecter des signaux optiques dans tout ce domaine de longueur d'onde, malgré une perte de puissance lorsque l'on s'éloigne de la longueur d'onde centrale. Cette atténuation a été mesurée et est compensée dans le calcul des résultats de mesure que nous présenterons par la suite. Dans ce système expérimental, l'échantillon est observé par un microscope qui alimente deux dispositifs : l'un est le dispositif champ sombre et l'autre la caméra de phase, dont nous allons brièvement présenter les principes de fonctionnement.

Commençons par le banc de mesure en champ sombre. Le principe de ce dispositif est montré en *Figure 99a*).

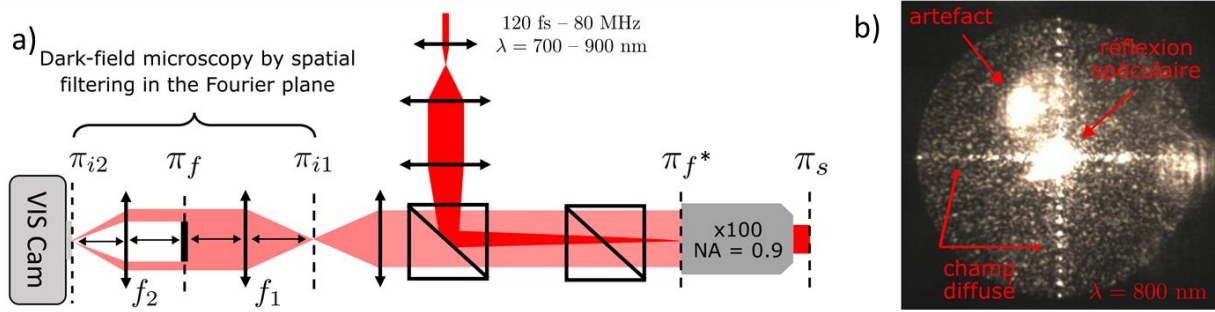


Figure 99 a) Schéma du dispositif expérimental de champ sombre et b) Image en champ sombre à 800 nm dans le plan de Fourier de l'objectif issue de la réflexion d'un réseau périodique

Le dispositif est conçu pour mesurer le champ lointain réfléchi. L'échantillon est placé dans le plan π_s à droite du diagramme. L'excitation laser est représentée venant du haut de l'image et son faisceau est focalisé sur la lentille d'entrée d'un objectif au niveau du plan π_{f^*} , de manière à obtenir une onde de puissance homogène sur la surface d'une cellule de $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ de l'échantillon. L'excitation est donc une onde quasi-plane. Ensuite, le champ incident est réfléchi par l'échantillon et l'image de ce champ est formée par l'objectif au niveau du plan π_{i1} du schéma. Cet objectif possède une ouverture numérique de 0,9, et ne collecte en réalité que le champ rayonné par l'échantillon dans les directions d'angle inférieur à 64° par rapport à la direction spéculaire, normale au plan de l'échantillon. Enfin, vient la partie du dispositif qui caractérise l'imagerie champ sombre : on utilise un dispositif dit « 4f ». Ce nom vient du fait que l'on va former l'image désirée à une distance égale à $4f$ du plan π_{i1} de l'objet, où f est la longueur focale des lentilles. L'image de ce plan est formée au plan π_{i2} par l'intermédiaire de deux lentilles appelées f_1 et f_2 . La première lentille permet de former une représentation spectrale du champ réfléchi par notre échantillon au niveau du plan focal dit « plan de Fourier » de la lentille, appelé π_f . Un masque optique est employé dans le plan π_f de manière à filtrer la composante de fréquence nulle du champ réfléchi, qui correspond au champ réfléchi autour de la direction spéculaire. En pratique, ce masque filtre le champ réfléchi à un angle inférieur à 10° par rapport à la direction spéculaire. La seconde lentille fournit une image finale du champ réfléchi dans les directions non spéculaires (nous dirons « aux grands angles ») par l'échantillon, au niveau du plan π_{i2} , où l'on place une caméra pour collecter le champ filtré. La Figure 99b) montre le champ réfléchi par une distribution périodique, au niveau du plan focal de Fourier π_{f^*} à l'entrée de l'objectif. Nous voyons apparaître deux lignes de points dans les directions horizontale et verticale, reflétant le caractère périodique de la distribution de champ réfléchi par le réseau périodique de piliers dont la décomposition en fréquences spatiales donne des points discrets, conformément au spectre de la transformée de Fourier d'une fonction périodique. Le point lumineux dans le quadrant haut gauche formé par les deux lignes de points ne vient que d'un défaut d'alignement du dispositif. Nous voyons un autre point lumineux central en position (0,0) dans le plan de Fourier, caractéristique de l'intensité réfléchie dans la direction spéculaire. C'est cette composante qui est filtrée par le masque optique dans le plan de Fourier de la lentille f_1 . Enfin, les tâches faiblement brillantes dans le reste de l'image viennent des imperfections de fabrication qui perturbent légèrement la périodicité de l'échantillon.

Cette technique de mesure est adaptée à l'imagerie des résonances plasmoniques, car le champ réfléchi dans la direction spéculaire est en général entaché de signaux parasites qui proviennent des défauts d'interfaces dans le circuit optique. Or, le rayonnement aux grands angles est caractéristique de la résonance MIM, et comme nous l'avons montré au chapitre II, il est directement le reflet de l'absorption par les piliers de la MS : le champ diffusé suit la même évolution que le champ absorbé. On peut donc caractériser l'absorption de nos MS par cette seule grandeur tout en s'affranchissant d'une source importante de bruit. Grâce à cette technique, nous sommes capables de calculer l'amplitude réfléchie par analyse de l'intensité des pixels de l'image obtenue. En revanche, il n'est pas possible d'obtenir une information quantitative de l'amplitude (une mesure entre 0 et 1 comme en simulation), car une partie du champ EM est filtré ; c'est la raison pour laquelle nous travaillerons avec des mesures exprimées en unité arbitraire.

III52 Observations à la caméra de phase

En complément, nous employons une méthode de mesure par caméra de phase. Cette technique permet d'obtenir à la fois une information sur la phase et sur l'amplitude du champ réfléchi en fonction de la position sur l'échantillon. Elle est particulièrement adaptée dans le cas de distributions périodiques de piliers sur la surface, car la phase de l'onde réfléchie est uniforme sur chaque cellule. La phase caractérise ainsi l'ensemble de la distribution. La mesure de phase repose sur l'utilisation d'un réseau de diffraction qui est placé entre l'échantillon et la caméra qui collecte le champ EM réfléchi. Une géométrie typique de ce réseau de diffraction est représentée sur la *Figure 100a* :

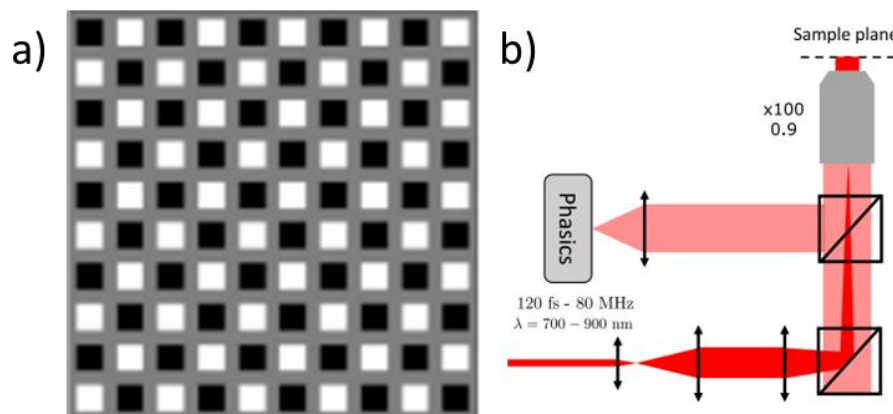


Figure 100 a) Géométrie du réseau de diffraction optique utilisé pour la caméra de phase et b) Schéma du montage expérimental permettant de réaliser la mesure de la caméra de phase commercialisée par l'entreprise Phasics

Ce réseau est composé d'une grille opaque et de cellules carrées transparentes (représentées en blanc et noir sur le schéma), conçues pour imprimer une phase de 0 et π par rapport à l'onde incidente transmise. Le déphasage introduit est suffisamment large bande pour fonctionner correctement dans notre gamme de longueurs d'onde [97]. Le réseau de diffraction sert à moduler le champ réfléchi par l'échantillon. Le déphasage périodique de 0 et π induit par le réseau permet de supprimer l'ordre 0 de diffraction. Ce réseau est ainsi conçu pour transmettre une grande partie du champ EM le long des quatre ordres de

diffraction d'ordre 1. Le front d'onde incident est porté selon les directions de ces quatre ordres de diffraction qui interfèrent entre eux pour former ce qu'on appelle un interférogamme, au niveau du plan de la caméra. En l'absence d'objet sur le chemin optique du laser, le front d'onde incident sur le réseau de diffraction est une onde plane, et ainsi l'interférogamme est absolument périodique, en raison de la périodicité du réseau de diffraction lui-même. En revanche, en présence de l'échantillon, la réflexion du champ déforme le front d'onde incident sur le réseau. Par transformée de Fourier de l'interférogamme, on peut ainsi retrouver la phase du champ réfléchi par l'échantillon en fonction de la position. L'amplitude peut aussi être calculée à partir de cet interférogamme. On obtient donc une carte de la phase et d'amplitude de l'onde réfléchie dont chaque pixel est associé à une position sur l'échantillon. Cette méthode ne nécessite pas de filtrage de la réflexion spéculaire. Pour donner une valeur de phase, il s'agit de prendre comme référence la phase de l'onde réfléchie dans une zone sans pilier de la distribution. Les deux méthodes sont implémentées sur le même banc de mesure optique, et le schéma du canal de mesure par caméra de phase est représenté sur la *Figure 100b*). La caméra de phase est commercialisée par l'entreprise Phasics. Le banc de mesure a été développé dans le cadre de la thèse de Thibault Deletang. Une description plus détaillée de ce dispositif est disponible dans [98].

III53 Caractérisation des échantillons périodiques

Nous allons, dans un premier temps, nous intéresser aux propriétés du premier échantillon périodique. L'objectif est d'identifier quels sont les diamètres des piliers qui présentent une résonance plasmonique à la longueur d'onde de 800 nm.

La *Figure 101* montre deux images en champ sombre de l'échantillon aux longueurs d'onde d'excitation 790 nm et 880 nm. Sur la figure, l'échantillon est orienté de la même manière que sur le masque correspondant de la *Figure 91a*). En revanche, seuls les réseaux de période $420 \text{ nm} \leq p \leq 920 \text{ nm}$ sont présents.

Comme on le voit sur les deux images de la *Figure 101*, les images en champ sombre sont en noir et blanc. Plus la zone est blanche, plus le champ réfléchi aux grands angles par la structure est intense, ce qui est représentatif des résonances plasmoniques. Il existe aussi d'autres zones qui apparaissent brillantes sur les images, comme la plupart des éléments métalliques servant de repères textuels pour indiquer les caractéristiques des réseaux périodiques. Ceux-ci ne sont pas associés à des résonances plasmoniques car les dimensions de ces éléments sont bien plus grandes que les piliers, mais ils se comportent comme des objets diffractants et diffusants du fait de leur grande taille et de la géométrie complexe du métal en forme de lettres et de chiffres. D'autre part, les zones non résonantes sont vues en noir car dans ce cas le champ est directement réfléchi dans la direction spéculaire après réflexion sur le plan de masse de 100 nm d'épaisseur. Or, comme ce champ est filtré, dans ce cas rien n'est détecté.

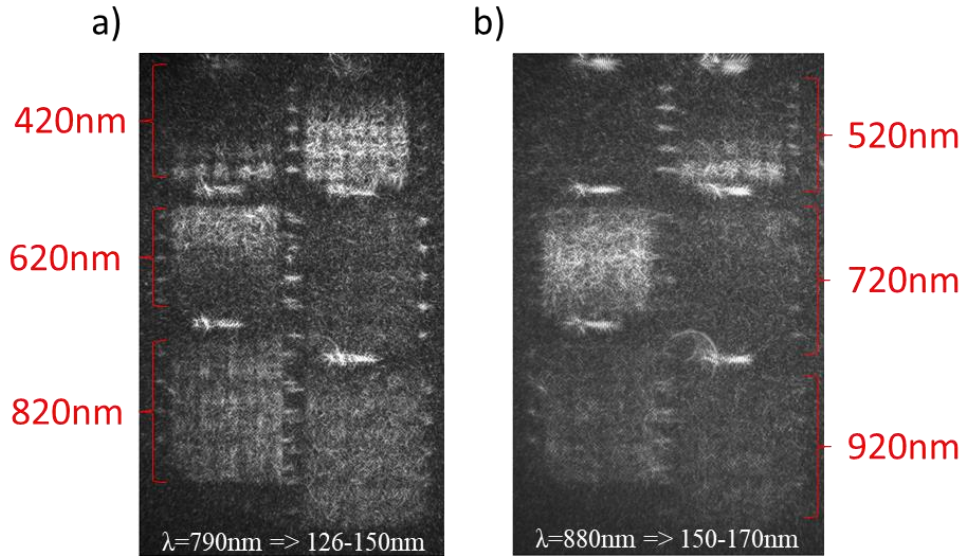


Figure 101 Images en champ sombre à $\lambda =$ a) 790 nm et b) 880 nm

Le phénomène physique qui garantit la correspondance qualitative entre le champ diffusé et le champ absorbé est le suivant : lorsque la réflexion spéculaire diminue, une plus grande intensité du champ EM interagit avec les piliers. Une partie de ce champ est absorbé par pertes ohmiques, mais une autre partie est rayonné par les piliers, qui se comportent comme des nano antennes. Il existe donc une correspondance directe entre le champ diffusé aux grands angles et le champ absorbé par la MS, et il semble justifié de mesurer la diffusion pour caractériser l'absorption. Dans le cas de réseaux périodiques, l'observation de résonances en champ sombre semble toutefois en contradiction avec les résultats de simulation, qui montrent que le champ diffusé aux grands angles en champ lointain par les réseaux périodiques est nul lorsque la période est inférieure à la longueur d'onde incidente, car alors tous les ordres de diffraction autres que l'ordre fondamental sont évanescents. Ce résultat est vrai dans l'absolu. Cependant, les résultats expérimentaux montrent que compte tenu des imperfections de fabrication, la diffusion en champ lointain par les réseaux périodiques réels est non nulle. Le raisonnement précédent peut donc s'appliquer : plus le champ diffusé aux grands angles est intense, plus la structure absorbe le champ incident.

Nous pouvons constater sur les images que lorsque l'on augmente la longueur d'onde du laser, les zones de l'échantillon qui résonnent correspondent à des réseaux de piliers de diamètre croissant (voir *Figure 91a*). Ce résultat a été prédit par les simulations du chapitre II et la relation (9) qui décrit la condition de résonance, énoncée au chapitre I :

$$d \frac{2\pi}{\lambda} n_{eff} = \pi - \phi \quad (41)$$

D'autre part, pour une longueur d'onde d'excitation donnée, on s'aperçoit que plusieurs lignes consécutives, correspondant donc à des diamètres différents, sont résonnantes. Ceci s'explique par la dispersion des diamètres fabriqués comme nous l'avons constaté au paragraphe III43. Sur les images de la *Figure 101*, l'intervalle des diamètres (il s'agit des diamètres sur le masque et non des diamètres réels)

des réseaux résonant à la longueur d'onde d'excitation est indiqué en bas des images. L'intervalle est de l'ordre de 20 nm. Cet intervalle est du même ordre de grandeur que la dispersion maximale évaluée sur une partie d'une distribution périodique de piliers (voir *Figure 97*). En effet, on avait estimé une dispersion d'environ 15 nm de diamètre sur un ensemble de 15 piliers. Il est donc raisonnable de penser que cette dispersion puisse être légèrement sous-estimée par rapport à la distribution entière contenant 15x15 piliers.

En complément de la caractérisation en champ sombre, les mesures à la caméra de phase sont pertinentes car elles fournissent les informations d'amplitude et de phase, qui sont deux paramètres clés lorsqu'il s'agit de détecter une résonance. En configuration périodique, toutes les résonances sont en phase. Cette phase est donc une information homogène sur la surface de chaque cellule périodique. Les mesures ont été faites à longueur d'onde constante du laser (800 nm), en balayant l'échantillon et donc en scannant les réseaux de différents diamètres. Les courbes d'évolution de l'amplitude et de la phase du champ réfléchi en fonction du diamètre des piliers des réseaux périodiques sont montrées en *Figure 102*. L'échelle verticale de la *Figure 102a*) est une échelle linéaire construite à partir d'une valeur référence d'amplitude mesurée en dehors des distributions, à laquelle on attribue la valeur de 0. Les valeurs négatives indiquent ainsi des amplitudes inférieures à cette valeur de référence. L'échelle verticale de la *Figure 102b*) correspond quant à elle à la différence entre les phases mesurées après réflexion sur une zone sans nanostructure, et sur les différentes distributions périodiques.

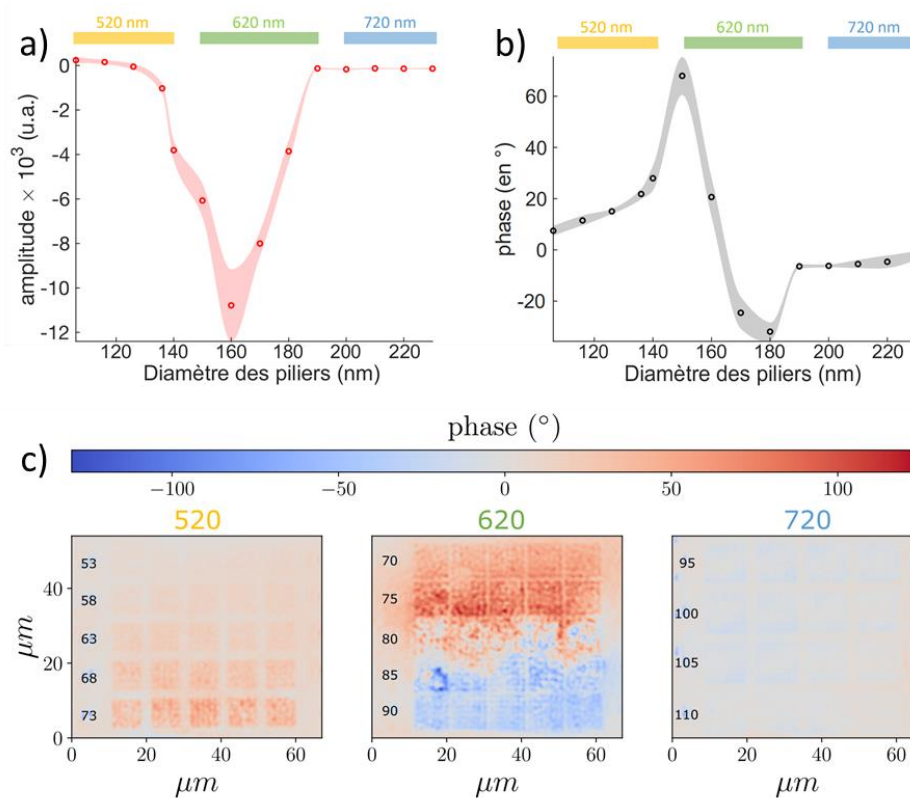


Figure 102 Courbes a) d'amplitude et b) de phase pour une excitation de longueur d'onde 800 nm en fonction du diamètre des piliers et c) cartes de phase mesurées en fonction de la position sur l'échantillon

Nous voyons sur la *Figure 102b*) qu'il existe un saut de phase d'environ 90° pour le champ réfléchi par les réseaux de piliers autour du diamètre 160 nm. En dehors du domaine du saut de phase, la phase vaut 0° environ. Il est à noter que la valeur de phase de la *Figure 102b*) est une valeur de phase moyennée sur chaque distribution : en effet, la *Figure 102c*) montre que compte tenu des incertitudes de fabrication, la phase n'est pas homogène au sein de chaque distribution, notamment lorsque l'on s'approche de la résonance. En effet, à la résonance, les variations de phase sont plus abruptes comme le montre la *Figure 102b*), ce qui explique pourquoi l'inhomogénéité de la phase est plus visible vers la résonance. Ce saut de phase s'accompagne également d'un minimum de réflexion pour les réseaux de même diamètre de piliers (*Figure 102a*)). Dans cette mesure, le champ n'est pas filtré dans la direction spéculaire. Le minimum du champ réfléchi est donc la conséquence directe d'une augmentation de l'absorption puisqu'ici l'amplitude totale du champ réfléchi est mesurée. Ainsi, les deux informations en amplitude et en phase coïncident pour montrer que la résonance MIM pour une excitation du laser à 800 nm se produit pour des diamètres de piliers de 160 nm. Cependant, les dimensions indiquées sur les graphiques sont celles du masque. Si on prend en compte que le diamètre réel obtenu en fabrication est de 25 nm plus grand environ, comme nous l'avons constaté au paragraphe III43 par l'examen des images MEB, il s'agit donc d'une résonance pour un diamètre d'environ 185 nm.

Nous avons vu en introduction que le mode de résonance MIM, à la condition de couplage critique, se trouvait à la frontière entre deux régimes distincts de saut de phase réfléchi [32]. On distingue les régimes sur-amorti et sous-amorti : dans le régime sous-amorti, le saut de phase du champ réfléchi est de 360° lorsque la fréquence varie autour de la résonance. En revanche, il est inférieur à 180° lorsque la MS est dans le régime sur-amorti. La *Figure 103* représente ainsi la phase et le module simulés du coefficient $|S_{11}|$ pour une MS de dimensions $(h_m, h_d, h, d) = (100, 20, 60, 126)$ nm, et une période variable autour de la période « critique » (absorption unitaire). La référence de phase est choisie à 0° pour la fréquence de 200 THz.

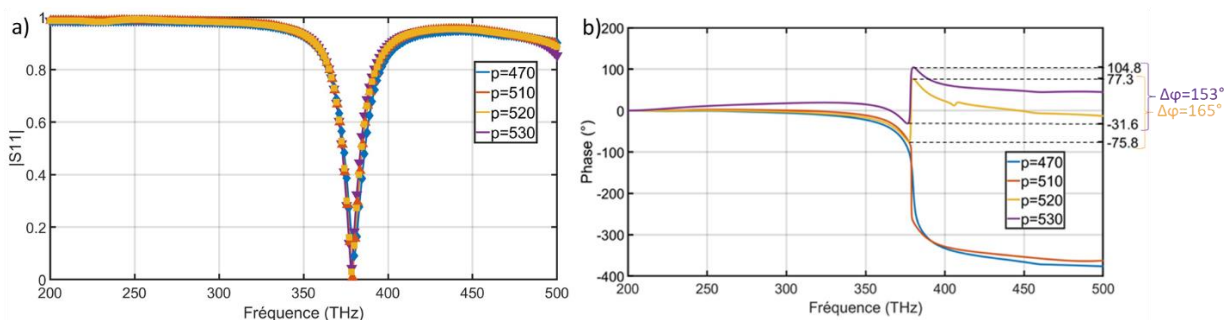


Figure 103 a) Module et b) Phase du coefficient S_{11} d'une MS périodique de dimensions $(h_m, h_d, h, d) = (100,20,60,126)$ nm autour de la période critique

L'amplitude proche de 0 du paramètre S_{11} à 375 THz environ montre que les quatre MS simulées sont proches de la condition de couplage critique. En revanche, la transition de phase mentionnée précédemment apparaît clairement. Pour une période $p < p_{opt}$, on remarque que la variation de phase est

de 360° environ lorsque la fréquence varie de part et d'autre de la résonance : les MS correspondantes sont dans le régime sous-amorti (on a noté p_{opt} la période optimale correspondant à la condition de couplage critique). En revanche, pour $p > p_{opt}$, la phase varie de près de 180° lorsque la fréquence varie autour de la fréquence de résonance. On remarque en outre que la variation de phase est moins grande lorsque la période augmente et s'éloigne de la période optimale : la variation de phase $\Delta\varphi$ autour de la fréquence de résonance passe de $\Delta\varphi=165^\circ$ à 153° quand p passe de 520 à 530 nm (voir *Figure 103b*).

Ces résultats permettent d'interpréter les mesures de la *Figure 102*. Il apparaît que la variation de phase mesurée est similaire à celle d'une MS sur-amortie. Toutefois l'évolution de la phase semble opposée sur les *Figure 102* et *Figure 103*. Ceci s'explique par le fait que la phase représentée en *Figure 103* est une phase absolue, alors que celle de la *Figure 102* est une phase relative car elle correspond à la différence de phase $\delta\varphi=\varphi_0-\varphi$, où φ_0 est la phase réfléchiée en dehors des résonateurs MIM. Cela explique pourquoi le sens de variation est opposé entre la courbe de simulation et la courbe expérimentale.

Cette remarque ne permet toutefois pas d'expliquer l'origine de la différence importante entre l'amplitude du saut de phase mesuré et simulé : elle est de seulement 90° environ expérimentalement, alors qu'elle est de presque 180° en simulation. Le saut de 180° est conforme à la valeur théorique qui prévoit un saut de phase de 180° lorsque la MS est dans le régime sur-amorti et proche de la condition de couplage critique, ce qui se produit pour les périodes $p \gtrsim p_{opt}$ dans notre structure. Pour comprendre l'origine de cet écart, nous traçons en *Figure 104* le module et la phase du coefficient S_{11} pour différentes distributions périodiques de diamètre variable par pas de 10 nm comme sur l'échantillon. La période est quant à elle ajustée systématiquement pour placer le comportement de la MS dans le régime sur-amorti mais proche de la résonance $p \gtrsim p_{opt}$. La période p varie de 290 à 640 nm.

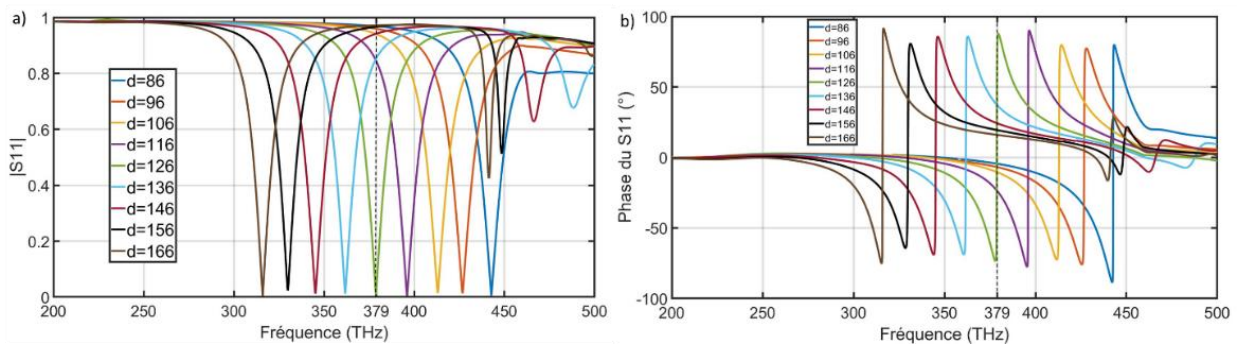
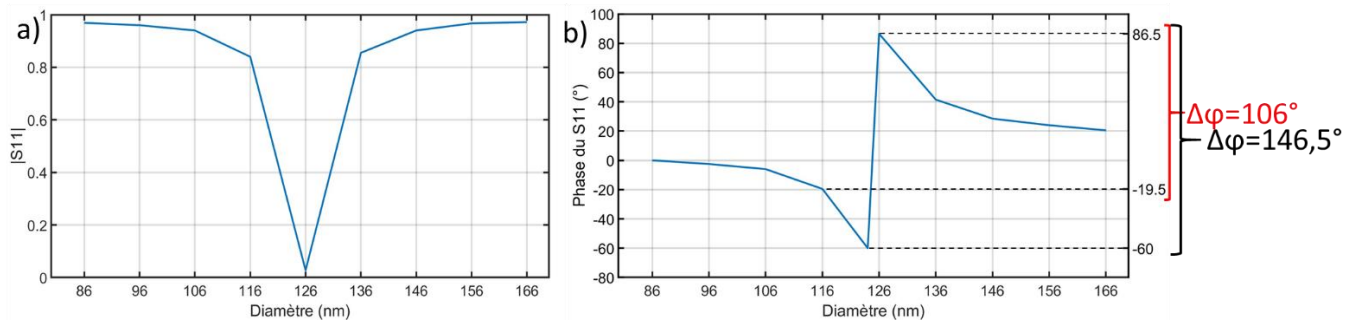


Figure 104 a) Module et b) phase du paramètre S_{11} pour des MS périodiques de dimensions $(h_m, h_d, h) = (100, 20, 60)$ nm pour différents couples diamètre/période donnant un couplage critique

La *Figure 104* montre que chaque distribution périodique est dans le régime sur-amorti (la phase du S_{11} varie de 180° autour de la résonance, voir *Figure 104b*), tout en restant proche de la condition de couplage critique ($|S_{11}| \sim 0$ à la fréquence de résonance, voir *Figure 104a*). Il est à noter que les pics d'absorption apparaissant vers les hautes fréquences pour les grandes périodes sont liés au phénomène de diffraction en incidence rasante dans le plan de la MS lié à la condition $p \sim \lambda = c/f$, c étant la vitesse de la lumière. Nous reviendrons plus en détail sur ce mode dans la suite de ce chapitre. Ainsi, nous pouvons

tracer en *Figure 105* l'amplitude et la phase du coefficient S_{11} pour chacune de ces distributions, à $f=379$ THz (au niveau de la ligne pointillée), ce qui correspond à une longueur d'onde $\lambda \sim 800$ nm. Cela nous permet de représenter l'évolution de la phase et de l'amplitude en fonction du diamètre des piliers de manière analogue à la *Figure 102*.



La *Figure 105b*) montre que l'amplitude du saut de phase est dépendant de la finesse du pas de variation du diamètre des piliers. En effet, on voit que lorsque le pas de balayage du diamètre est de 10 nm (le diamètre varie de 86 à 166 nm par pas de 10 nm), la variation de phase autour du diamètre résonant vaut seulement 106° . En comparaison, pour la MS de 124 nm de diamètre, l'amplitude du saut de phase augmente à $146,5^\circ$ (la phase pour $d=124$ nm vaut -60°). Pourtant, les sauts de phase de chaque MS en fonction de la fréquence valent presque 180° (voir *Figure 104b*), la phase de la MS de diamètre 124 nm n'est pas représentée par souci de clarté). Cela montre qu'en réalité, le saut de phase mesuré est dépendant de la précision du pas du paramètre qui varie de part et d'autre de la résonance. En simulation, le pas de variation de la fréquence est très fin, ce qui permet de mesurer des variations de phase proches de 180° , ce qui n'est pas le cas des mesures, où le diamètre varie de 10 nm en 10 nm d'une distribution à l'autre. Cette dépendance de l'amplitude du saut de phase vis-à-vis du pas de balayage est la conséquence du fait que la variation de phase n'atteint une amplitude de 180° qu'à la limite où l'on franchit la résonance. Cette singularité n'est pas physiquement problématique, dans la mesure où l'amplitude du champ réfléchi devient nulle autour de la fréquence de résonance (voir *Figure 105a*), donc la phase du champ réfléchi n'est plus définie. On comprend ainsi que l'amplitude de seulement 90° du saut de phase mesuré expérimentalement et présenté en *Figure 102b*) n'est due qu'au pas fini de balayage de 10 nm. En effet, ce saut de phase est du même ordre de grandeur que le saut de phase simulé de la *Figure 105b*) pour un même pas de balayage du diamètre (106°) dans les MS en condition de couplage critique.

En conclusion, bien que la distribution de dimensions $p=620$ nm et $d=185$ nm appartienne au régime sur-amorti, nous avons montré que ces dimensions sont proches de celles qui donnent le couplage critique, à une précision sur le diamètre de l'ordre du pas de balayage, c'est-à-dire à moins de 10 nm près. Cela correspond à une densité de piliers de 7%, ce qui est proche de la densité optimale calculée par simulation à 800 nm (5%).

En revanche, nous notons une nette différence entre le diamètre des piliers qui résonnent à 800 nm entre les mesures expérimentales et les simulations numériques : il est de 126 nm en simulation alors qu'il se situe vers 185 nm expérimentalement. Cette différence a été prise en compte dans la conception du masque constitué de distributions désordonnées où le diamètre visé maximal des piliers est de 200 nm.

III54 Caractérisation des échantillons désordonnés

Nous allons désormais nous intéresser aux mesures effectuées sur le deuxième échantillon contenant des distributions désordonnées de piliers. Nous construisons les distributions de la même manière que les distributions simulées, exceptée la condition supplémentaire de distance minimale bord à bord entre piliers qui permet de garantir l'isolation des cylindres fabriqués. On rappelle que chaque distribution désordonnée est caractérisée par son écart type σ (on donnera sa valeur normalisée par la période σ/p). Les distributions périodiques ($\sigma/p=0$) permettent de faire le lien avec l'échantillon périodique précédemment caractérisé. De plus, on pourra également mesurer l'influence de la densité de piliers car chaque cellule désordonnée a été fabriquée pour deux niveaux de densité différents : 5% et 20%.

Cet échantillon a été caractérisé en champ sombre, et les mesures quantitatives réalisées par exploitation de l'intensité des pixels de l'image. Pour ces mesures, on a fait varier la longueur d'onde du laser entre 700 et 900 nm.

La *Figure 106* montre les images en champ sombre obtenues pour différentes longueurs d'onde du laser sur la distribution périodique ($\sigma/p=0$) de période $p=758$ nm et de diamètre 180 nm (densité ~5%). Il s'agit ici du diamètre moyen réel, calculé en tenant compte de l'écart de -10 nm obtenu en fabrication par rapport aux dimensions du masque. Les valeurs de la longueur d'onde du laser sont indiquées en rouge au-dessus de chaque image. Le domaine représenté comprend la cellule entière de $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ (voir *Figure 92a*), ce qui correspond à plusieurs milliers de résonateurs.

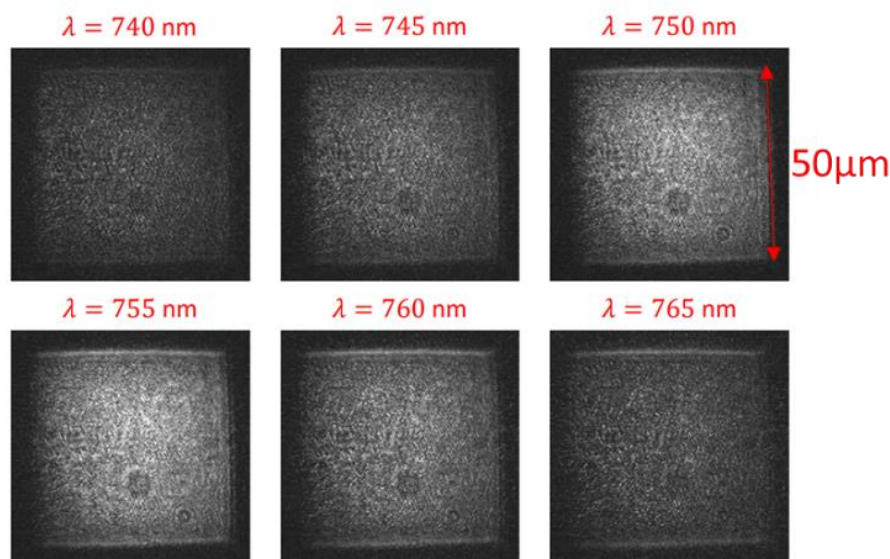
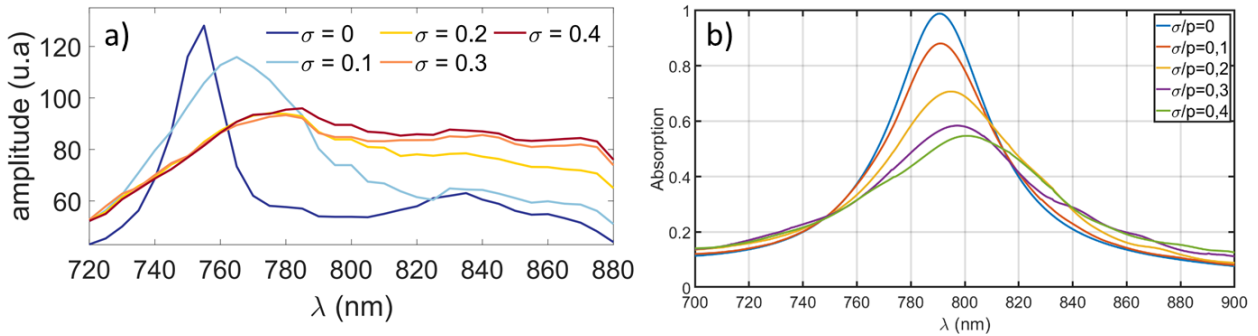


Figure 106 Images champ sombre obtenues sur la cellule périodique de période $p=758$ nm, et de diamètre $d=180$ nm (densité 5%) en fonction de la longueur d'onde du laser

Nous pouvons constater une zone claire sur les images champ sombre, donc une résonance, pour une longueur d'onde d'excitation $\lambda=755$ nm.

A partir des images champ sombre, on peut tracer l'évolution des propriétés d'absorption lorsque l'on fait varier l'écart type relatif σ/p . La *Figure 107a*) montre les courbes d'absorption pour les cellules de piliers de diamètre $d=180$ nm en fonction de σ/p pour la densité de 5%, ainsi que l'absorption de distributions désordonnées de même densité et de diamètre $d=126$ nm en fonction de σ/p , calculée par simulation, en *Figure 107b*).



Nous pouvons remarquer qu'il existe un pic d'absorption intense et de facteur de qualité relativement élevé (sa largeur à mi-hauteur est de 30 nm), en position $\lambda=755$ nm environ pour la distribution $\sigma/p=0$, comme suggéré par les images champ sombre de la *Figure 106*. Ce pic d'absorption s'élargit en se décalant légèrement vers les grandes longueurs d'onde pour $\sigma/p=0,1$ puis disparaît pour $\sigma/p \geq 0,2$. Etant donnée la dimension de la période ($p=758$ nm), ce mode a donc lieu à longueur d'onde $\lambda \sim p$. Ce mode est appelé parfois l'anomalie de Wood/Rayleigh (WR), car cette résonance a été observée expérimentalement par Wood [99], puis étudiée théoriquement par Rayleigh, qui a décrit sa position spectrale par la loi suivante [100] :

$$\sin(\theta_n) = \sin(\theta) + \frac{n\lambda}{p} \quad (42)$$

Dans cette expression, θ_n est l'angle de propagation du mode d'ordre de diffraction n , θ l'angle d'incidence, λ la longueur d'onde incidente, et p la période du réseau. Cette loi est approximative dans la mesure où elle est purement géométrique et ne prend pas en compte la nature des matériaux, alors qu'il a été montré que les matériaux jouent un rôle dans la position spectrale de certains modes de WR [101]. Toutefois, elle constitue une bonne approximation. Ici, $\sin(\theta)=0$ car l'incidence est normale, et si l'on considère le mode de diffraction d'ordre 1 alors si $\lambda=p$:

$$\sin(\theta_1) = 1 \quad (43)$$

Le mode mesuré est donc le mode de diffraction de WR d'ordre 1 qui se propage en incidence rasante ($\theta_1 = 90^\circ$ par rapport à la normale) dans le plan de la MS. Ce mode est lié à la période de répétition du

réseau et n'est donc pas le mode MIM, associé aux MA, étudié dans cette thèse. Ceci permet de comprendre pourquoi le facteur de qualité de ce mode est grand. En effet, la dispersion des diamètres des piliers autour de la valeur souhaitée ne joue qu'un rôle mineur dans la répartition spectrale de cette résonance : seule la valeur de la période compte. Or, celle-ci est peu sensible aux incertitudes de fabrication car la position des piliers ne souffre pas des défauts de lithographie. Etant donné que ce mode se traduit par une propagation dans le plan de la MS, une partie de la puissance électromagnétique est dissipée sous forme de pertes ohmiques dans le métal et l'autre partie est rayonnée aux grands angles, et peut être détectée. Compte tenu du caractère périodique de ce mode, il est donc logique de le voir disparaître avec l'introduction du désordre.

On peut distinguer un deuxième pic d'absorption peu intense sur la courbe spectrale de rayonnement champ sombre de la distribution périodique, à la longueur d'onde $\lambda \sim 830$ nm. Au vu de sa faible amplitude, il est possible de s'interroger si ce mode représente bien le mode MIM ou si l'augmentation de l'intensité du champ sombre à cette fréquence est simplement due à un bruit de mesure. La *Figure 108* montre la courbe de réflexion en champ sombre pour les réseaux périodiques de dimensions $p=758$ nm, $d=180$ nm (réseau de la *Figure 107a*) et $p=793$ nm, $d=190$ nm (dimensions réelles).

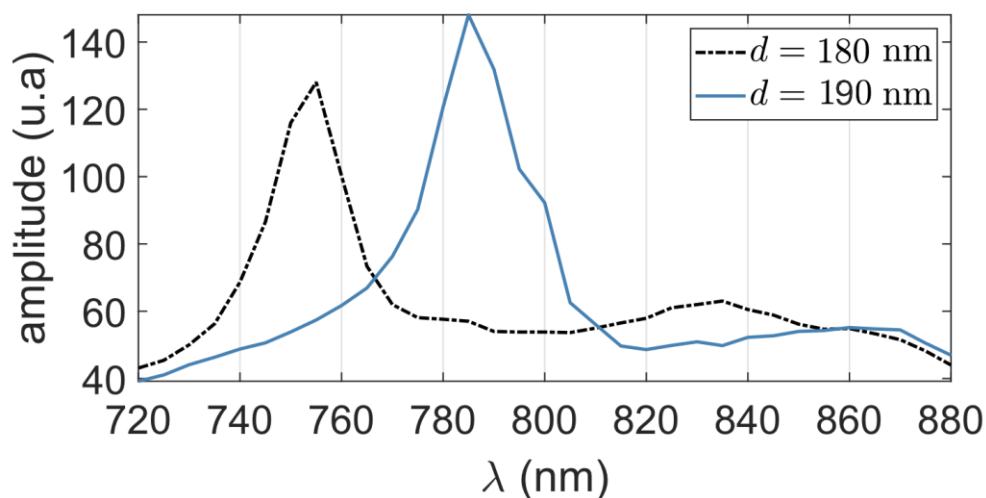


Figure 108 Courbes de réflexion en champ sombre mesurées sur les réseaux de diamètre $d=180$ nm, $p=758$ nm et $d=190$ nm, $p=793$ nm (densité 5%)

On remarque sur la *Figure 108* qu'outre le pic d'absorption de WR de fort coefficient de qualité, en position $\lambda \sim p$, il existe aussi un léger pic d'absorption de faible coefficient de qualité autour de la longueur d'onde 860 nm environ pour la distribution de diamètre $d=190$ nm, que l'on peut attribuer au mode MIM. En effet, on note un écart spectral d'environ 15 THz de fréquence entre les modes MIM de ces deux distributions (361 et 347 THz environ pour les réseaux de diamètres 180 et 190 nm respectivement), ce qui est en accord avec le décalage spectral observé en simulation sur les réseaux périodiques lorsque le diamètre varie par pas de 10 nm (voir *Figure 104a*) notamment). Ce pic est donc reproductible d'une distribution à l'autre, et n'est donc pas dû à un bruit de mesure.

La position spectrale du mode MIM de la distribution $d=180$ nm est un peu décalée par rapport à celle qui avait été mesurée à 800 nm par caméra de phase sur l'échantillon périodique pour un diamètre de piliers comparable. Cette différence ne vient pas des légères différences qui existent entre les dimensions géométriques de ces deux échantillons, liées aux incertitudes de fabrication, car la tendance ne va pas dans le sens de l'évolution des diamètres. Ce phénomène semble plutôt lié à la présence du mode de WR qui perturbe la position spectrale du mode MIM, comme nous allons le confirmer par des résultats de simulation. En effet, la *Figure 109* représente les courbes spectrales d'absorption simulées pour des MS périodiques de dimensions $(h_m, h_d, h, d) = (100, 20, 100, 126)$ nm, en fonction de la période de répétition p .

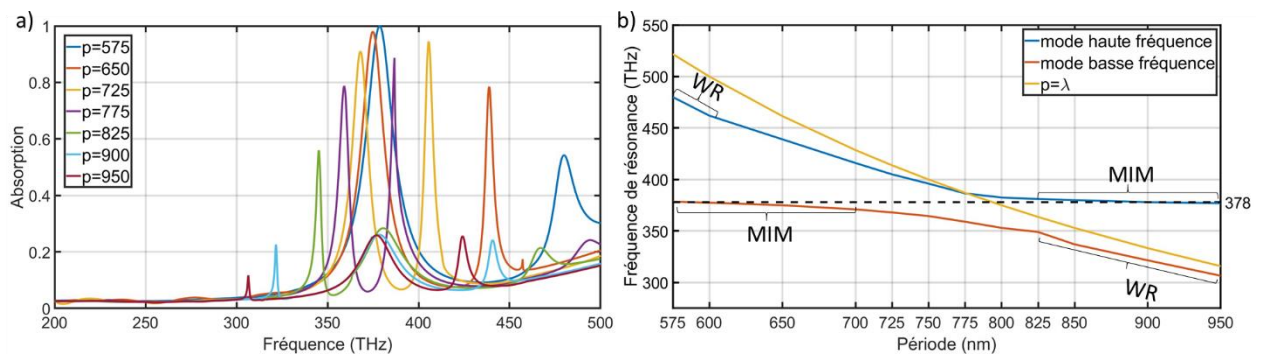


Figure 109 a) Courbes spectrales d'absorption simulées de MS périodiques de dimensions $(h_m, h_d, h, d) = (100, 20, 100, 126)$ nm en fonction de la période et b) Fréquence de résonance des modes de haute et basse fréquences de la Figure 109a) en fonction de la période. La courbe $p=\lambda$ est également représentée

On remarque sur la *Figure 109a)* qu'il existe deux modes d'absorption dans la bande spectrale d'intérêt lorsque $p=575$ nm : le mode MIM à $f\sim 375$ THz et le mode de diffraction de WR à $f=480$ THz, soit $\lambda=625$ nm. Lorsque la période augmente ($575 \text{ nm} < p < 725$ nm), le mode de diffraction se décale vers les basses fréquences en vertu de la loi $p\sim\lambda$ et son amplitude augmente, tandis que la position spectrale du mode MIM est peu perturbée. Lorsque la période augmente encore et que les deux modes sont proches spectralement, le mode de plus basse fréquence se décale vers les basses fréquences et son amplitude diminue, tandis que l'amplitude et le facteur de qualité du mode de plus haute fréquence diminuent fortement lorsque p passe de 775 à 825 nm, puis sa fréquence se stabilise autour de $f=375$ THz. Il est à noter qu'un troisième mode apparaît en hautes fréquences lorsque $p>825$ nm et qu'il se décale vers les basses fréquences quand p augmente. La *Figure 109b)* représente la fréquence de résonance des modes de basse et haute fréquence (la fréquence du troisième mode n'est pas représentée), en fonction de la période p . Par souci de clarté, toutes les courbes d'absorption qui ont permis de construire la *Figure 109b)* ne sont pas représentées en *Figure 109a)*. Enfin, à titre indicatif, la courbe d'équation $p=\lambda$ est représentée. Lorsque p est autour de 575 nm, la fréquence du mode de basse fréquence est peu dépendante de la période, contrairement à celle du mode de haute fréquence, dont la position spectrale suit sensiblement l'évolution $p=\lambda$. L'observation de ces tendances nous permet de lever toute ambiguïté sur l'identification de ces modes MIM et de WR. A mesure que p augmente, il s'opère une transition vis-à-vis de la variation de la position spectrale. En effet, lorsque $p>825$ nm, la variation s'inverse par

rapport au cas $p=575$ nm entre les modes de basse et haute fréquence, que l'on peut attribuer à nouveau sans ambiguïté aux modes de WR et MIM. Entre ces deux valeurs de période, les deux modes sont toujours distincts spectralement, mais compte tenu de la variation de la fréquence de résonance, il semble injustifié de parler de « mode MIM » ou de « mode de WR », ce qu'on retrouve clairement sur les cartes de champ magnétique de ces modes, qui sont représentées en *Figure 110*.

Les *Figure 110a*, *c*) et *e*) puis *b*), *d*) et *f*) représentent les cartes de champ magnétique pour les modes de basse et de haute fréquence respectivement, à leur fréquence de résonance respectives, dans les mêmes MS que celles étudiées en *Figure 109* pour quatre valeurs de période p . Lorsque $p=575$ nm (*Figure 110a*) et *b*)), on peut distinguer clairement les deux modes par leurs cartes de champ. Le mode MIM à 378 THz est un mode qui présente un fort champ magnétique sous les piliers. En revanche, le mode de WR à 480 THz est caractérisé par un champ réparti assez uniformément dans la cellule élémentaire. Lorsque $p=725$ nm (*Figure 110c*) et *d*)), on voit que le mode de WR acquiert un caractère magnétique caractérisé par un fort champ magnétique sous les piliers (*Figure 110d*) et devient donc un mode « hybride » entre mode MIM et mode de WR. Le mot hybride est employé ici dans un sens différent de l'hybridation des modes décrit au chapitre I et observé au chapitre II, qui traite des modes de résonance d'ensembles de plusieurs résonateurs couplés. Le champ magnétique de ce mode est orienté dans la direction opposée à celle du mode MIM ($-x$ et $+x$ respectivement, cf le système de coordonnées de la *Figure 110*). De même, lorsque $p=825$ nm (*Figure 110e*) et *f*)), le mode MIM acquiert lui aussi un profil « hybride », caractérisé par un champ magnétique non négligeable en dehors du MA par rapport à sa valeur sous le pilier. Enfin, lorsque $p=950$ nm (*Figure 110g*) et *h*)), les cartes de champ sont inversées par rapport au cas $p=725$ nm, avec un mode magnétique de direction opposée entre les deux modes ($+x$ et $-x$ respectivement).

On voit donc que proche du mode de WR, le mode MIM « s'hybride », et sa fréquence de résonance est décalée vers les basses fréquences. Sur la *Figure 109b*), on remarque qu'à $p=700$ nm, la différence de fréquence de résonance des modes MIM et de WR est de 34 THz (371 contre 405 THz respectivement), ce qui est très proche de la différence de fréquence de résonance mesurée en champ sombre sur la courbe $\sigma/p=0$ de la *Figure 107a*) ($\lambda=755$ nm correspond à 397 THz et $\lambda=830$ nm à 361 THz, la différence de fréquence vaut donc 36 THz). Or pour $p=700$ nm, la résonance du mode MIM est décalée de 371 THz contre 378 THz à cause de son « hybridation », ce qui permet d'estimer le décalage de longueur d'onde lié à « l'hybridation » de 15 nm environ (de 794 à 809 nm). Ces observations fournissent en outre un argument supplémentaire permettant d'attribuer le pic d'absorption mesuré à 830 nm en champ sombre au mode MIM « hybride ». En effet, les simulations suggèrent que le mode diffraction de WR est plus intense lorsqu'il se rapproche spectralement du mode MIM (voir *Figure 109a*). Or, le mode de WR mesuré en champ sombre représenté en *Figure 107a*) est relativement intense.

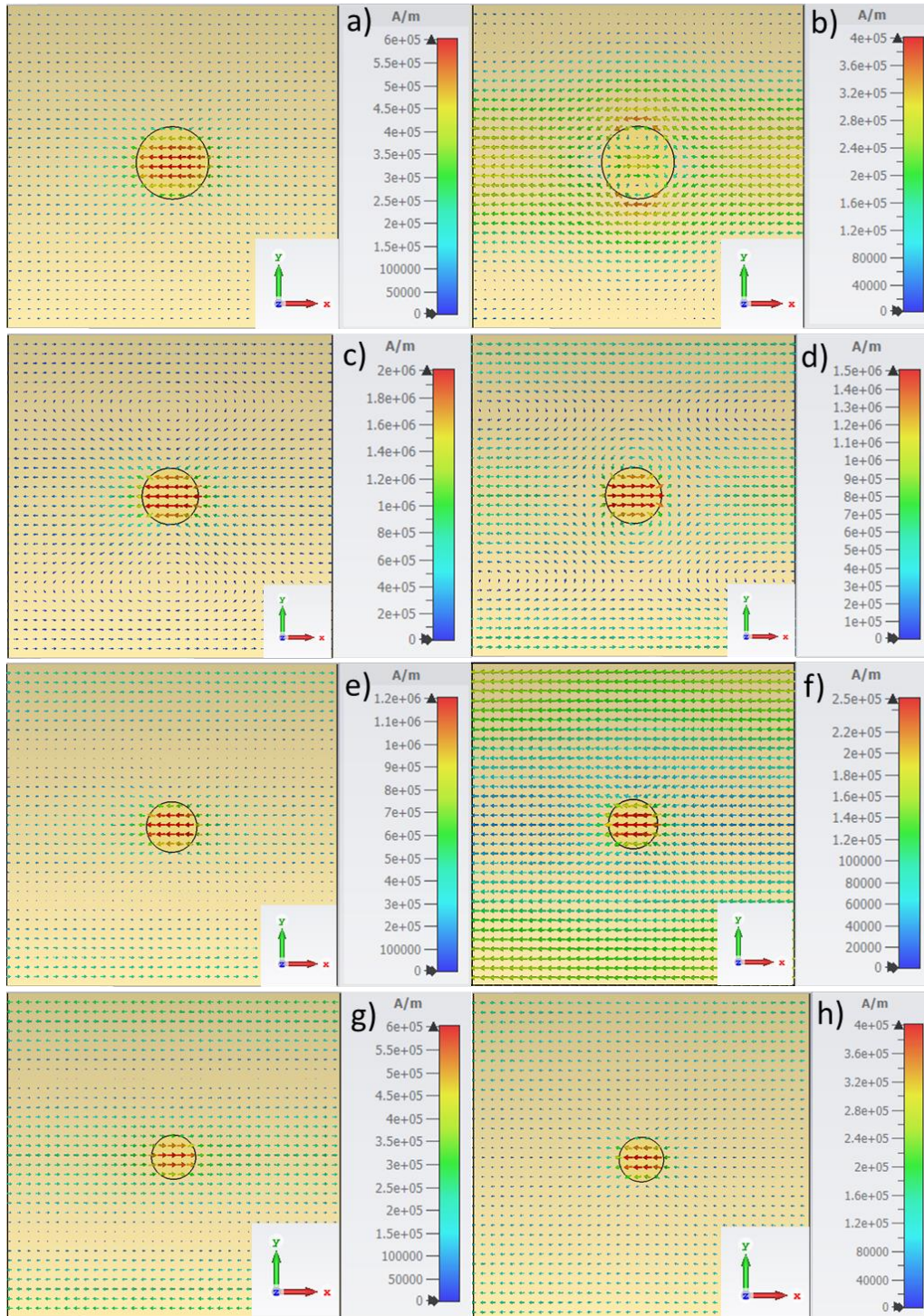


Figure 110 Cartes de champ H en coupe horizontale dans le plan $z=120$ nm à la base du pilier pour $p=575$ nm à la fréquence $f=$ a) 378 THz et b) 480 THz, $p=725$ nm à $f=$ c) 368 THz et d) 405 THz, $p=825$ nm à $f=$ e) 345 THz et f) 381 THz et $p=950$ nm à $f=$ g) 306 THz et h) 377 THz

Nous pouvons donc conclure quant à l'effet du désordre sur l'absorption par le mode MIM mesuré expérimentalement sur la *Figure 107a*). Pour une densité de piliers de 5%, le pic du mode MIM, déjà peu intense et de faible facteur de qualité compte tenu de la dispersion des diamètres en configuration périodique, disparaît complètement pour $\sigma/p \geq 0,1$. A la place de ce pic, on voit apparaître un plateau d'absorption sur tout le domaine de longueurs d'onde de 780 à 880 nm environ. De plus, l'absorption devient quasi indépendante du niveau de désordre à partir de $\sigma/p=0,3$. Cette observation est

qualitativement en accord avec les simulations numériques (voir *Figure 107b*), qui montrent un écrasement de ce pic lorsque l'on augmente le niveau de désordre. Il faut toutefois garder à l'esprit que les courbes d'absorption expérimentales sont tracées pour un mode MIM « hybride ». D'autre part, et contrairement aux simulations de la *Figure 107b*, l'augmentation du désordre entraîne une augmentation du niveau d'absorption sur toute la bande de longueur d'onde. Cela signifie que la MS périodique de l'échantillon désordonné fabriqué n'est pas en condition de couplage critique. Compte tenu des résultats de l'échantillon périodique, on peut attribuer cela à la trop faible densité des distributions (une période initiale $p=758$ nm trop élevée), car la période optimale identifiée sur ce précédent échantillon était de 620 nm environ (voir *Figure 102a*).

Nous allons maintenant analyser l'effet de l'augmentation de la densité sur le comportement d'absorption. La *Figure 111* montre l'évolution expérimentale et numérique de l'absorption d'une distribution désordonnée ($\sigma/p=0,4$), pour des densités de 5 et 20%.

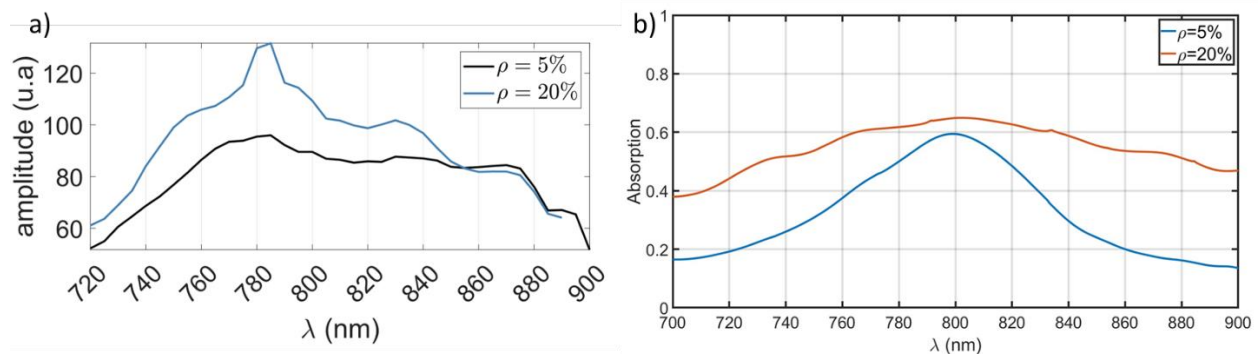


Figure 111 a) Courbes de réflexion en champ sombre mesurées sur les réseaux de diamètre $d=180$ nm avec $\sigma/p=0,4$ pour une période $p=758$ nm (densité $\rho=5\%$) et $p=378$ nm (densité $\rho=20\%$) et b) courbes simulées d'absorption de réseaux $d=126$ nm avec $\sigma/p=0,4$ et de période $p=520$ nm (densité 5%) et $p=250$ nm (densité 20%), avec $h=100$ nm et $h_d=20$ nm

L'augmentation de la densité correspond à une diminution de la période du réseau initial $p=378$ nm, qui est par conséquent bien inférieure à la longueur d'onde d'excitation. Le mode de diffraction de WR n'est donc pas présent dans la bande spectrale de mesure. Ainsi, le pic de résonance visible sur la courbe bleue de la *Figure 111a*) correspondant à la densité de 20%, correspond au mode MIM. En outre, le décalage de la fréquence de la résonance MIM de 15 nm (785 contre 800 nm) par rapport à l'échantillon périodique est cohérente avec la légère augmentation des diamètres et de l'épaisseur du diélectrique dans l'échantillon désordonné compte tenu des incertitudes de fabrication.

Nous avons anticipé au chapitre précédent au moyen de simulations que l'augmentation de la densité permettait d'augmenter la largeur de bande d'absorption, et que l'introduction de désordre dans des MS denses permettait de combiner des niveaux d'absorption élevés ainsi qu'une largeur de bande de plus de 100 THz. Ces prédictions sont confirmées par les résultats expérimentaux. La *Figure 111a*) montre en effet que l'augmentation de la densité à 20% permet d'obtenir des niveaux d'absorption plus élevés que pour une densité plus faible de 5%, et ce sur toute la gamme de longueur d'onde explorée [700;900] nm. On retrouve cette caractéristique sur la *Figure 111b*). Il semble toutefois que la courbe de champ sombre

soit associée à une résonance assez marquée pour la densité de 20% car le maximum de la réflexion aux grands angles est très net, même pour ce fort niveau de désordre, alors que ce pic n'apparaît sur la courbe d'absorption obtenue en simulation.

En conclusion, nous avons vu que les tendances anticipées en simulation étaient globalement confirmées par les mesures expérimentales, notamment l'intérêt de combiner les forts niveaux de densité et de désordre pour augmenter l'absorption moyenne sur la bande spectrale autour de 800 nm.

III55 Analyse des écarts entre simulation et expérience

La comparaison des résultats de simulation et mesure exposée dans les deux précédents paragraphes montre une similitude qualitative des résultats observés. Cependant, il existe une nette différence de diamètre des piliers donnant une résonance à la longueur d'onde d'intérêt 800 nm, que ce soit pour les distributions périodiques ou désordonnées. L'objectif est de comprendre l'origine de cette différence, en essayant de réduire au maximum les différences entre les conditions de simulation et de mesure dont nous avons rappelé les sources en introduction de ce chapitre. Nous allons étudier la configuration périodique qui est plus facile à analyser.

La *Figure 112a*) montre la courbe d'absorption simulée d'un réseau périodique de mêmes dimensions que le réseau périodique fabriqué correspondant à la courbe bleu foncé de la *Figure 107a*). On rappelle ses dimensions : $h_m=100$ nm, $h_d=22,5$ nm, $h=100$ nm, $p=758$ nm et $d=180$ nm.

Les cartes de champ **E** et **H** des deux pics observés sont représentées en *Figure 112b*), *d*) (303 THz) et *c*), *e*) (385 THz, $\lambda=779$ nm). Pour le premier pic, on identifie la répartition de champ du mode MIM. Pour le second pic, on identifie le mode de WR en position $\lambda \sim p$ qui apparaît sur les courbes expérimentales.

Nous constatons un écart de fréquence de 79 THz entre simulation et mesure pour le mode MIM, à dimension identique de structure. Il est en effet à 303 THz en simulation et à 382 THz expérimentalement. Toutefois, comme nous l'avons expliqué au paragraphe III22, la structure fabriquée contient une couche de titane de 5 nm d'épaisseur sous les piliers d'or pour promouvoir leur adhérence sur la couche de SiO₂, qui n'a pas été prise en compte dans les simulations présentées jusqu'à présent.

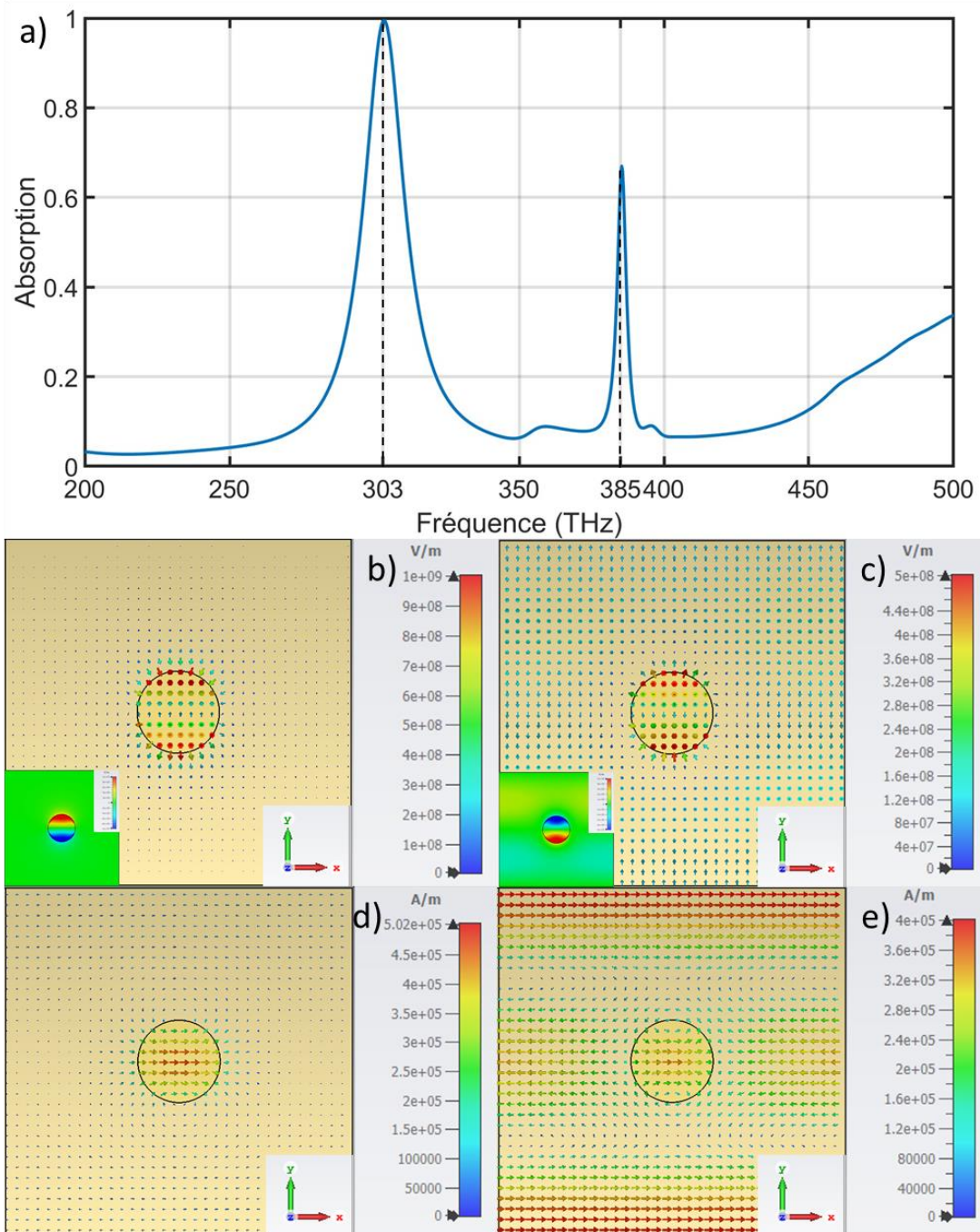


Figure 112 a) Absorption spectrale de la MS périodique de dimensions $(h_m, h_d, h, d, p) = (100, 22,5, 100, 180, 758)$ nm. Cartes de champ en coupe au niveau du plan $z=120$ nm à $f=303$ THz du champ b) \mathbf{E} et d) \mathbf{H} et $f=385$ THz du champ c) \mathbf{E} et e) \mathbf{H}

Nous allons donc étudier l'influence de ce paramètre sur l'absorption de la MS. La Figure 113a) montre l'absorption simulée pour la structure périodique de la figure précédente, avec et sans couche d'accroche de titane. Pour la simulation, les propriétés électromagnétiques du titane sont tirées de [102].

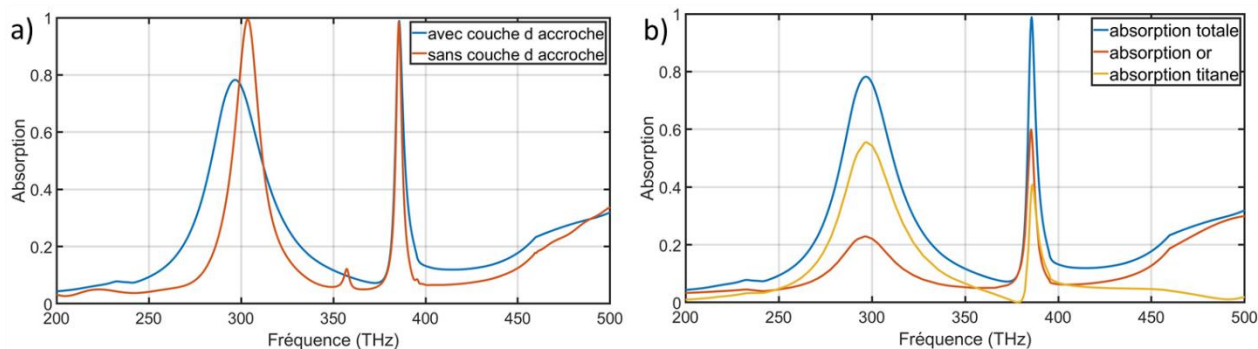


Figure 113 a) Absorption spectrale de la structure de la Figure 112 avec et sans couche d'accroche de titane et b) Absorption totale de la structure et dans les deux métaux en présence de couche d'accroche

La Figure 113 révèle que l'ajout de la couche d'accroche a un effet non négligeable sur le comportement d'absorption de la MS. En Figure 113a), on peut constater que l'ajout de la couche d'accroche diminue l'absorption par le mode MIM, qui passe de 1 à environ 0,8. De plus, la position spectrale du maximum d'absorption est légèrement décalée de 5 THz vers les basses fréquences (303 à 298 THz). La Figure 113b) montre que la proportion du champ EM dissipé dans le titane à la fréquence de résonance du mode MIM est même supérieure à celle dissipée dans l'or, alors que celui-ci est présent en plus grande quantité. En effet, à la fréquence du pic du mode MIM, l'absorption totale est de 0,8 et le titane est responsable à hauteur de 0,55 de cette absorption, soit environ 70%. Ceci est dû au fait que le phénomène d'absorption repose sur l'excitation d'un plasmon de surface localisé (PSL, voir paragraphe I222). Ainsi, l'absorption est réalisée dans de très faibles volumes de métal au niveau des deux interfaces isolant/métal. C'est donc l'interface Ti/SiO₂ qui est la nouvelle interface plasmonique. Le titane joue donc un rôle important. La Figure 114a) montre la permittivité de l'or et du titane utilisées dans le modèle de simulation, sur le domaine spectral [200 ; 500] THz. La permittivité de l'or est tirée de [47], utilisée dans les simulations.

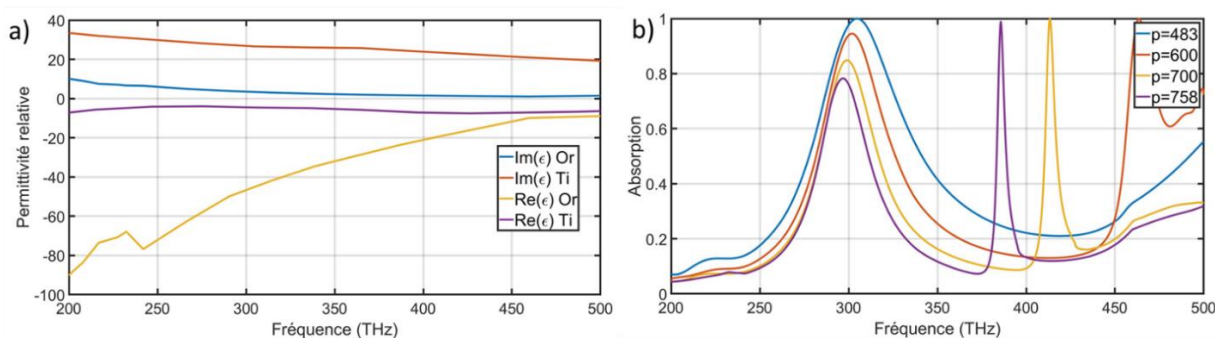


Figure 114 a) Permittivité relative réelle et imaginaire en fonction de la fréquence pour l'or et le titane b) Absorption spectrale pour les MS périodiques de dimensions $(h_m, h_d, h, d) = (100, 22,5, 100, 180)$ nm en fonction de la période

On remarque deux différences principales entre les propriétés électromagnétiques de l'or et du titane. D'une part, les pertes, représentées par la partie imaginaire de la permittivité, sont plus importantes dans le titane que dans l'or sur toute la bande spectrale d'intérêt. Ces pertes plus importantes expliquent que le titane fasse partie des métaux choisis pour réaliser des MS MIM de large bande d'absorption,

contrairement aux métaux dits nobles tels que l'or, comme décrit au paragraphe I312. D'autre part, la valeur absolue de la permittivité réelle de l'or est quant à elle très supérieure à celle du titane jusqu'à 450 THz. Cet écart des paramètres explique donc qu'il existe une différence significative de comportement d'absorption avec et sans couche d'accroche. La *Figure 114b*) montre les courbes spectrales d'absorption de la MS précédente en faisant varier la période. On remarque que la période optimale en présence de la couche d'accroche est de 483 nm (densité 11,5% environ), contre environ 750 nm sans couche d'accroche (densité 5%). Ces résultats suggèrent que l'augmentation de la densité optimale de 5 à 7% observée expérimentalement par rapport à la simulation dans les structures périodiques, est due à la présence de la couche d'accroche dans les MS fabriquées. Cette densité expérimentale est plus faible que la densité de 11,5% calculée numériquement avec couche d'accroche. Toutefois, dans cette modélisation, la couche d'accroche est considérée comme homogène, ce qui n'est pas tout à fait réaliste compte tenu de la faible épaisseur de cette couche. On peut ainsi faire l'hypothèse que l'influence de la couche d'accroche est donc un peu surestimée en simulation. D'autre part, la fréquence correspondant à la condition de couplage critique en *Figure 114b*) est d'environ 305 THz alors que la mesure présentée en *Figure 102* a été faite à 375 THz. Par conséquent, le comportement des matériaux est différent dans ces deux cas. On comprend aussi pourquoi le pic d'absorption lié au mode MIM est peu intense pour une densité de 5% (voir *Figure 107a*). En revanche, la prise en compte de la couche d'accroche ne permet pas d'expliquer l'origine du décalage fréquentiel significatif observé entre les résultats de simulation et expérimentaux.

En conclusion, nous pouvons constater qu'il existe un écart de diamètre d'environ 55 nm des MA résonants autour de 800 nm (ou de manière équivalente un écart de fréquence de 79 THz à dimensions identiques de la MS) entre les mesures expérimentales et la simulation. La prise en compte de la couche d'accroche de titane, si elle permet de comprendre plus finement le comportement d'absorption de la MS, n'explique pas cet écart. D'autres hypothèses ont été envisagées. La pertinence des modèles des matériaux utilisés en simulation a été évaluée, mais il est apparu que lorsque l'on modélise l'or par un modèle de Drude, les paramètres du modèle qui permettent d'obtenir une concordance de fréquence entre les mesures expérimentales et les simulations n'étaient pas réalistes. De même, la géométrie imparfaite des nano-cylindres n'est pas un argument suffisant pour expliquer cet écart. Enfin, le recours à une super cellule en simulation ne constitue pas non plus un argument pertinent, dans la mesure où la diminution de la taille du domaine ne change pas de manière significative les résultats de simulation.

Néanmoins, courbes mesurées et simulées sont concordantes quant à l'influence du désordre et des paramètres géométriques.

III56 Influence de l'épaisseur des piliers

Le paramètre de l'épaisseur h des piliers n'a pas été étudié expérimentalement dans ce travail de thèse. Il a en effet été fixé à $h=100$ nm pour l'ensemble des échantillons. Nous allons montrer dans ce

paragraphe quelques résultats de simulation qui expliquent comment ce paramètre pourrait être employé dans la conception de futures MS.

La *Figure 115* montre le champ électrique \mathbf{E} et le vecteur de Poynting \mathbf{P} en coupe verticale d'une MS périodique au niveau d'un pilier pour deux épaisseurs différentes, à leur fréquence de résonance respective.

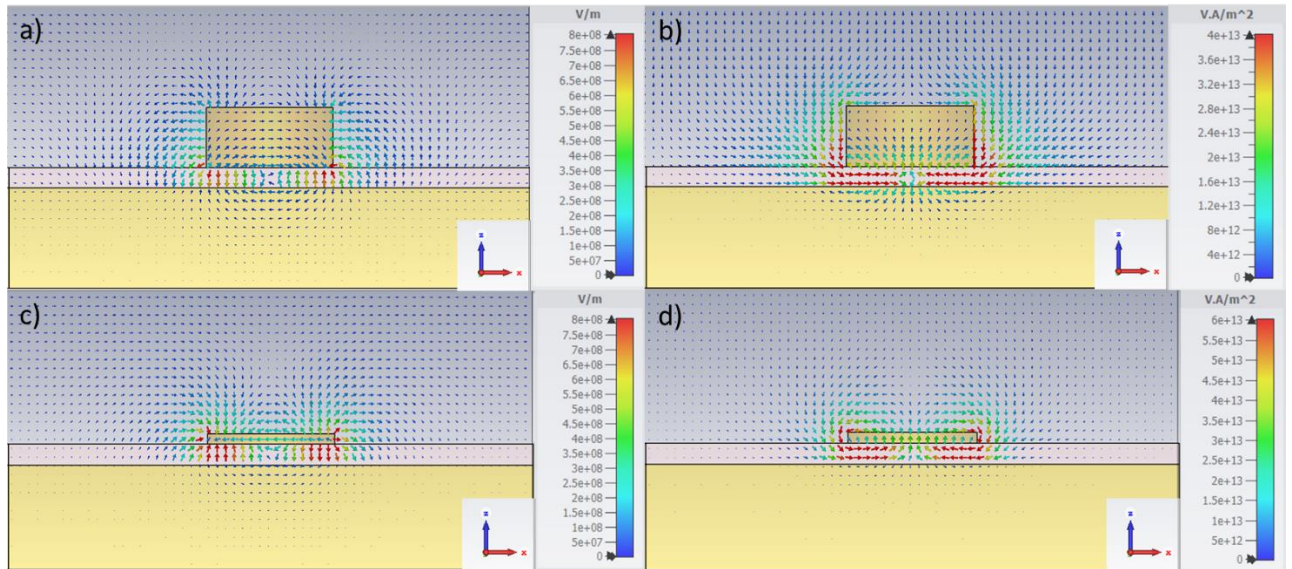


Figure 115 Cartes de champ en coupe verticale dans le plan $y=0$ pour une configuration périodique de dimensions $(h_m, h_d, d, p) = (100, 20, 126, 520)$ nm, pour $h=60$ nm à $f=375$ THz a) Champ \mathbf{E} b) Champ \mathbf{P} et à $h=10$ nm à 305 THz c) Champ \mathbf{E} d) Champ \mathbf{P}

On remarque à la résonance que le champ \mathbf{E} , s'il est le plus intense dans la partie diélectrique, est aussi distribué de manière non négligeable sur toute la hauteur du bord des piliers (*Figure 115a*) et *c*). Pour l'épaisseur $h=60$ nm de la *Figure 115a*), on voit ainsi qu'au sommet du pilier, l'amplitude de \mathbf{E} est d'environ $3 \cdot 10^8$ V/m, soit à peu près un tiers du maximum de champ. On remarque également sur les *Figure 115b*) et *d*) que les lignes du vecteur de Poynting suivent les bords verticaux des piliers et s'orientent dans la partie diélectrique. Ces cartes de champ permettent de supposer que l'augmentation de l'épaisseur des piliers permet d'augmenter l'intensité du couplage entre les MA. D'une part, les piliers peuvent interagir en champ proche par les composantes évanescentes du champ présent sur les bords verticaux. D'autre part, on peut également supposer que l'augmentation de l'épaisseur permette de capter le champ rayonné par les autres piliers de la distribution en champ lointain, en guidant la puissance incidente le long du bord vertical vers l'interface plasmonique, comme suggéré par les *Figure 115b*) et *d*). Dans les deux cas, l'intensité du couplage doit croître avec h , en champ proche comme en champ lointain.

La structure de dimère étudiée au chapitre II a été étudiée pour évaluer l'intensité du couplage en champ proche en fonction de h . La *Figure 116* montre l'absorption spectrale du dimère de particules en configuration périodique, pour deux épaisseurs de pilier différentes, en fonction de l'écartement bord à

bord ρ variant de 5 à 50 nm. L'excitation est polarisée dans la direction y (le système de coordonnées est représenté sur la *Figure 116a*)).

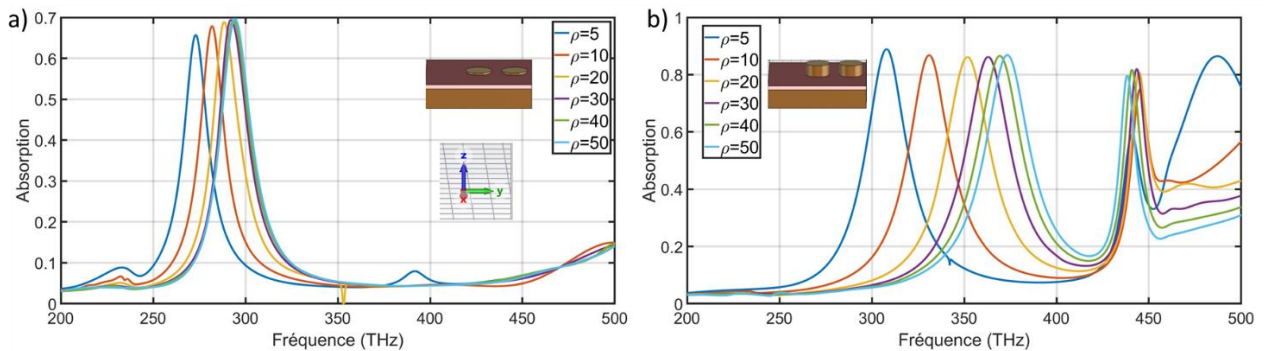


Figure 116 Absorption spectrale pour le dimère étudié au chapitre II, avec $\theta=90^\circ$ et en fonction de ρ , pour $h=$ a) 10 nm et b) 60 nm. Les figures insérées représentent une cellule élémentaire de la structure simulée dans le cas $\rho=50$ nm

Nous remarquons que pour une épaisseur $h=10$ nm, la diminution de la fréquence de résonance du mode MIM avec la diminution de ρ , est plus faible que pour $h=60$ nm. Dans le cas $h=10$ nm, l'écart de fréquence de résonance entre $\rho=50$ nm et $\rho=5$ nm vaut 20 THz environ, alors qu'il est d'environ 65 THz pour $h=60$ nm. Compte tenu du rôle du couplage sur la position fréquentielle dont nous avons discuté dans cette thèse, nous pouvons conclure que le couplage en champ proche est plus intense lorsque l'épaisseur augmente, car le décalage fréquentiel vers les basses fréquences est plus grand pour une même variation de ρ . Il est à noter que le mode d'absorption autour de 440 THz dont nous avons discuté au chapitre II, disparaît pour de faibles épaisseurs de piliers (voir *Figure 116a*)), ce qui est logique dans la mesure où ce mode est issu d'un couplage entre piliers et que le champ magnétique associé se répartit sur toute la hauteur des piliers adjacents (voir paragraphe II.4.3).

On sait que le contrôle du couplage entre résonateurs permet de modifier le coefficient de qualité radiatif de la MS [34], et nous avons vu que le paramètre de l'épaisseur permettait de modifier les couplages. Ainsi, si les autres paramètres géométriques de la MS sont fixés, il est donc possible d'obtenir la condition de couplage critique de la MS, c'est-à-dire l'absorption unitaire, en ajustant ce seul paramètre. La *Figure 117* montre l'épaisseur critique h_c en nm en fonction de la période du réseau pour des dimensions $(h_m, h_d, d)=(100, 20, 126)$ nm fixées. L'encart montre les courbes d'absorption correspondantes. La légende de la figure en encart indique la valeur du couple période/épaisseur des piliers en nm.

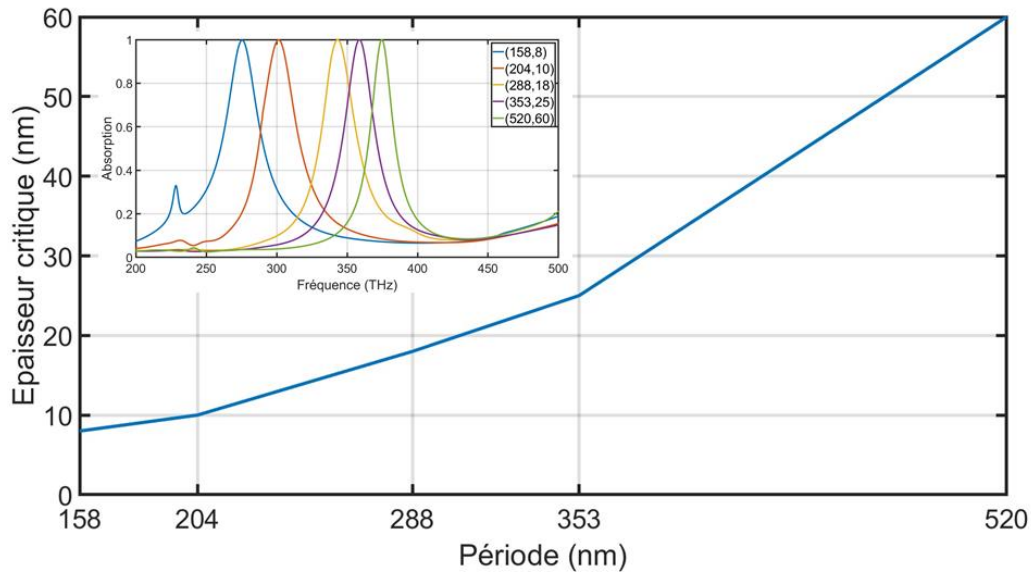


Figure 117 Epaisseur critique en fonction de la période pour des MS périodiques de dimensions $(h_m, h_d, d) = (100, 20, 126)$ nm. L'encart montre les courbes d'absorption spectrales des MS correspondantes.

On voit qu'à dimensions fixées, il existe systématiquement une épaisseur, qu'on peut donc qualifier d'épaisseur critique, permettant d'obtenir le couplage critique pour chacune des périodes étudiées. On remarque que les épaisseurs critiques sont plus faibles pour les plus faibles valeurs de période. Cette observation confirme l'hypothèse de la diminution du couplage entre MA pour de faibles épaisseurs de piliers.

Pour comprendre le rôle de l'épaisseur des piliers dans les distributions désordonnées, nous avons simulé en Figure 118 l'absorption de distributions fortement désordonnées ($\sigma/p=1$), pour deux périodes initiales différentes, $p=158$ et 520 nm, avec l'épaisseur comme paramètre. Les figures en encart montrent les deux distributions de piliers simulées. Les autres dimensions sont fixées à $(h_m, h_d, d) = (100, 20, 126)$ nm.

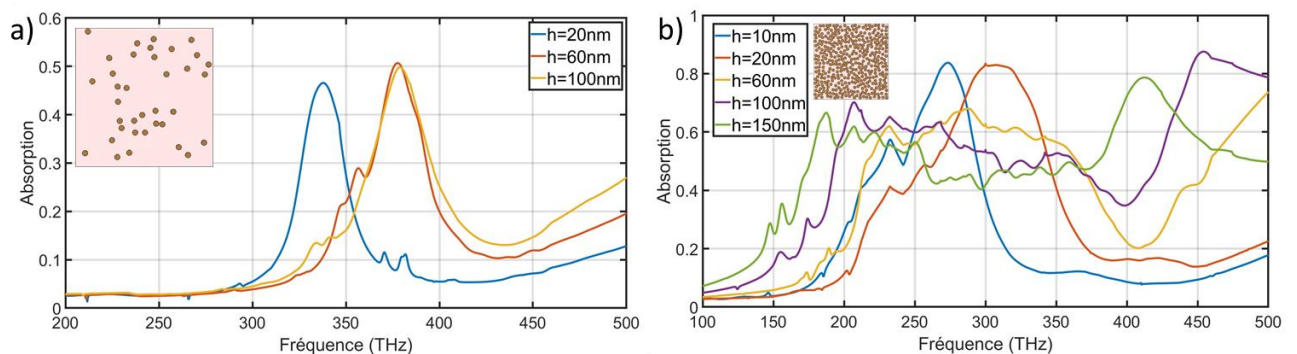


Figure 118 Courbes spectrales d'absorption de distributions désordonnées de dimensions $(h_m, h_d, d) = (100, 20, 126)$ nm et de paramètre $\sigma/p=1$ pour différentes valeurs de h et de densité a) 5% ($p=158$ nm) et b) 50% ($p=520$ nm)

La Figure 118a) montre que la fréquence de résonance diminue avec l'épaisseur des piliers, conformément aux observations de la Figure 116. Cette fréquence est très stable lorsque h passe de 100 à 60 nm, mais diminue de manière significative de 60 à 20 nm. Il est à noter que quand l'épaisseur des piliers augmente, l'absorption aux fréquences supérieures à 450 THz augmente. Cela confirme que cette

absorption est liée aux propriétés d'absorption intrinsèques de l'or, car l'absorption augmente lorsque la quantité d'or augmente.

L'influence de l'épaisseur est plus importante pour une densité de 50% ($p=158$ nm, *Figure 118b*). On remarque que la bande d'absorption est moins étendue pour les piliers de faible épaisseur. Enfin, la bande se décale vers les basses fréquences à mesure que h augmente. Cela illustre une nouvelle fois le rôle de l'épaisseur dans les mécanismes de couplage.

En conclusion, on voit que malgré le fait que le phénomène d'absorption MIM soit un phénomène d'interface entre l'or et le SiO_2 , l'épaisseur du pilier joue un rôle non négligeable dans le comportement d'absorption par son influence sur la fréquence de résonance et sur l'intensité du couplage : ce paramètre peut donc être exploité dans la conception des MS afin de modifier le spectre d'absorption.

III6 Conclusion

Ce chapitre a été dédié à l'étude expérimentale de l'influence du désordre dans les métasurfaces. Nous avons tout d'abord exposé les différentes étapes de fabrication des échantillons. En lithographie électronique, les phénomènes de diffusion et rétrodiffusion des électrons dans la résine électron-sensible limitent la précision de la fabrication des motifs. Cela nous a conduit à introduire une distance minimale entre motifs voisins de 20 nm, déterminée empiriquement par un échantillon préparatoire, pour éviter la percolation des motifs que nous avons interdite en simulation. Les limites de résolution de la fabrication nous ont également contraints à caractériser les dimensions des paramètres géométriques critiques des échantillons, qui sont l'épaisseur de la couche isolante et le diamètre des piliers. Ceux-ci ont été ainsi caractérisés respectivement par ellipsométrie et traitement des images obtenues en microscopie électronique.

Nous avons fabriqué un premier échantillon constitué de différentes distributions périodiques. Les mesures à la caméra de phase à $\lambda=800$ nm ont montré un saut de phase et une diminution de l'amplitude du champ réfléchi pour un diamètre moyen des piliers de 185 nm environ, correspondant à une densité de 7%. Nous avons ensuite fabriqué un deuxième échantillon, composé de distributions désordonnées de paramètre σ/p croissant, pour les densités de 5 et 20%. Cet échantillon a été caractérisé par spectroscopie champ sombre dans la gamme de fréquence 700-900 nm. Pour la densité de 5%, deux modes participent à l'absorption dans ce domaine de longueurs d'onde, dans la métasurface de diamètre moyen 180 nm : un mode de diffraction de Wood/Rayleigh et le mode métal-isolant-métal. Il apparaît que l'augmentation de σ/p fait disparaître le pic d'absorption lié à l'excitation du mode métal-isolant-métal, pour laisser place à une absorption relativement constante autour de la fréquence centrale du mode métal-isolant-métal, en configuration périodique. On remarque d'autre part que dans les distributions désordonnées, l'augmentation de la densité permet d'augmenter le niveau d'absorption, ce qui confirme les résultats des simulations numériques.

Il subsiste des différences entre résultats de simulation et expérimentaux. Les incertitudes de fabrication permettent de comprendre pourquoi le pic d'absorption métal-isolant-métal est de plus faible facteur de

qualité par rapport aux simulations. En effet, il existe une dispersion des diamètres des piliers fabriqués, autour de la valeur moyenne de 180 nm. Toutefois, ce facteur ne suffit pas à expliquer les différences de position spectrale de la résonance. Ainsi, une fois les incertitudes de fabrication prises en compte, il reste un écart d'environ 80 THz en configuration périodique entre la fréquence de résonance expérimentale et simulée. En outre, si la modélisation numérique de la couche d'accroche permet de comprendre les différences de niveau d'absorption, son rôle dans la position spectrale de la résonance n'est pas significatif.

Enfin, en guise de perspective, nous avons mis en évidence l'intérêt de contrôler l'épaisseur des piliers dans la conception de futurs échantillons. En effet, des simulations numériques préliminaires révèlent notamment que l'intensité du couplage entre résonateurs augmente avec l'épaisseur des piliers.

Conclusion générale

Dans ce travail de thèse, nous avons étudié le rôle du désordre dans le comportement optique de métasurfaces composées de méta-atomes en configuration métal-isolant-métal dans le domaine de l'infrarouge proche. Cette analyse est articulée en trois parties.

Dans le premier chapitre, nous avons commencé par introduire les concepts fondamentaux étudiés dans le cadre de ce travail, puis nous avons discuté du mécanisme de résonance métal-isolant-métal, qui peut être exploité tant dans le domaine des microondes que dans l'infrarouge pour réaliser cette fonction d'absorption. Nous avons rappelé comment l'introduction du désordre agissait physiquement sur le fonctionnement des métasurfaces : d'une part en modifiant les conditions d'interférence du champ rayonné par les différents méta-atomes des métasurfaces, et d'autre part en modifiant les conditions de couplage entre ces méta-atomes. Nous avons vu que le facteur de structure, qui décrit la distribution géométrique des résonateurs, intervient dans l'expression du champ rayonné par ceux-ci. Le choix du type de désordre permet donc de modifier les propriétés de rayonnement des métasurfaces. Ainsi, les distributions hyperuniformes, voire hyperuniformes furtives, dont le facteur de structure s'annule dans un domaine fini de vecteur d'onde longitudinaux, ont été employées dans des systèmes diffusants pour supprimer complètement la diffusion. Le couplage entre résonateurs, dû à leur excitation par le champ diffusé par le reste de la distribution, modifie quant à lui leur comportement de résonance individuel. Les modes de résonance issus de ce mécanisme, décrits par la théorie de l'hybridation, sont nombreux et possèdent des fréquences propres. Ceci justifie la pertinence du désordre pour augmenter la largeur de bande d'absorption dans les métasurfaces.

Au second chapitre, nous avons étudié numériquement le comportement optique des métasurfaces. Après avoir rappelé le principe et la mise en œuvre de la méthode des éléments finis et les méthodes d'introduction du désordre, nous avons simulé les métasurfaces en configuration périodique. Nous avons optimisé les paramètres géométriques pour obtenir la condition de couplage critique dans cette situation de référence. Celui-ci a lieu pour une densité de résonateurs de 5%. Ensuite, nous avons analysé les effets du désordre pour différentes densités de résonateurs entre 5 et 50%. Les résultats font apparaître que l'introduction du désordre est peu judicieuse en termes de maximum d'absorption, d'absorption moyenne ou de largeur de bande pour la densité de 5%. Pour les densités « moyennes » (10 et 15%), l'introduction d'une quantité limitée de désordre permet de maintenir un niveau d'absorption maximum élevé, tout en améliorant légèrement la largeur de bande d'absorption et l'absorption moyenne. Pour les densités plus importantes (30 et 50%), plus l'amplitude du désordre est importante, plus l'absorption maximale, l'absorption moyenne et la largeur de bande augmentent. Ces améliorations s'effectuent cependant au détriment de l'augmentation de la diffusion par la métasurface, ce qu'on peut expliquer qualitativement par l'examen du facteur de structure. Cependant, l'analyse du comportement d'absorption de ces distributions par le facteur de structure n'est pas suffisante, ce qui a été montré sur des distributions désordonnées en une dimension en fonction de la polarisation incidente. Les couplages désordonnés jouent un rôle important dans l'amélioration des performances d'absorption, ce qui a été

aussi illustré sur des distributions denses en fonction du paramètre de distance minimale entre plus proches voisins, et sur des structures composées de résonateurs conglomérés.

Enfin, le chapitre III est consacré aux résultats de l'étude expérimentale des effets du désordre dans les métasurfaces. Après avoir rappelé les procédures et contraintes de fabrication, nous avons présenté l'objectif des différents échantillons fabriqués. Une distance minimale de 20 nm entre plus proches voisins a été déterminée empiriquement pour répondre aux incertitudes de fabrication issues des mécanismes de diffusion et rétrodiffusion des électrons dans la résine. Les incertitudes sur les dimensions critiques des métasurfaces ont été caractérisées par ellipsométrie et traitement des images du microscope électronique à balayage. Enfin, nous avons utilisé les techniques de spectroscopie champ sombre et caméra de phase pour caractériser le comportement d'absorption des échantillons fabriqués. En configuration périodique, une résonance métal-isolant-métal caractérisée par un minimum de réflexion et un saut de phase du champ réfléchi, a été observée à la longueur d'onde $\lambda=800$ nm pour la métasurface de diamètre moyen 185 nm et de période 620 nm. Cette étude préliminaire a permis d'analyser les effets du désordre en spectroscopie champ sombre dans le domaine $\lambda=700-900$ nm dans un second échantillon contenant des distributions de désordre d'amplitude croissante pour des densités de 5 et 20%. Pour la densité de 5%, nous avons mesuré deux modes de résonance : un mode de diffraction de Wood-Rayleigh et le mode métal-isolant-métal. Le pic spectral associé à ce mode s'aplatit lorsque l'amplitude du désordre augmente, conformément aux simulations. Pour la densité de 20%, seul le mode métal-isolant-métal contribue à l'absorption dans la bande mesurée. En configuration fortement désordonnée, on observe une nette amélioration du niveau d'absorption pour la densité de 20% comparée à la densité de 5%, ce qui corrobore les conclusions des résultats numériques. Il serait en outre utile de poursuivre expérimentalement l'étude du désordre pour des densités supérieures à 20% afin de combler l'écart avec les densités simulées. Enfin, en guise de perspective, une étude expérimentale sur le paramètre de l'épaisseur des piliers pourrait être envisagée pour contrôler le comportement des métasurfaces, dans la mesure où l'augmentation de l'épaisseur augmente l'intensité des couplages entre résonateurs.

Ces travaux éclairent le choix des paramètres de la distribution des résonateurs qui permettent d'optimiser l'absorption de champ électromagnétique. Cependant, il reste encore à harmoniser les structures optique et mécanique pour pouvoir localiser les deux types d'ondes dans une même métasurface.

Annexe 1 : Code de génération des distributions par perturbation de réseaux périodiques

Le code suivant écrit en langage Scilab permet de calculer les positions des centres des piliers sur la surface de la MS par perturbation d'un réseau périodique initial, selon la procédure détaillée au paragraphe II32.

*// Générateur de structure hyperuniforme de A*B points en perturbant le réseau carré de côté 1. Chaque point est perturbé par une gaussienne centrée d'écart type sigma. Chaque point est entouré d'un disque impénétrable de rayon r. Les points sont enfermés dans la boîte [0.5,A+0.5]*[0.5,B+0.5]*

```
clear
clf

A=100 // largeur de la boîte
B=100 // hauteur de la boîte
sigma=0.4 // Sigma de la perturbation gaussienne
p = 520
diametre = 126 // diametre cylindres
dmin=0
rayon_exclusion = diametre/2+dmin/2
r=rayon_exclusion/p

N=100*A*B // Nombre de pas dans l'Algo de Monte Carlo

X=ones(B,1)*[1:A]
Y=[1:B]*ones(1,A)

t=-log(max(1-((1-2*r)/sigma)^2,0.5))/2 // pour avoir la bonne variance du pas

l=exp(-t/2)
v=sigma*sqrt(1-exp(-t))

Xinitial=X
Yinitial=Y
M=0

depmax=0
compteur = 0

for t=1:N
    i=grand(1,1,'uin',1,B)
    j=grand(1,1,'uin',1,A)

    x=grand(1,1,'nor',Xinitial(i,j)+(X(i,j)-Xinitial(i,j))*l,v)
    y=grand(1,1,'nor',Yinitial(i,j)+(Y(i,j)-Yinitial(i,j))*l,v)

    if x>0.5+r & y>0.5+r & x <A+0.5-r & y<B+0.5-r then

        Xmem=X
        Ymem=Y

        k=int(2*depmax+2*v)+1
        Xmem(i,j)=3*A
        Ymem(i,j)=3*B

        Xbloc=Xmem(max(1,i-k):min(B,i+k), max(1,j-k):min(A,j+k))
        Ybloc=Ymem(max(1,i-k):min(B,i+k), max(1,j-k):min(A,j+k))

        d=min((Xbloc-x).^2+(Ybloc-y).^2)

        if d>(2*r)^2 then
```

```

X(i,j)=x
Y(i,j)=y
depmax=max(depmax,abs(x-Xinitial(i,j)),abs(y-Yinitial(i,j)))
M=M+1
end

end

end

taux=M/N

XX=[]
YY=[]

XXinitial = []
YYinitial = []
for i=1:B
    XX=[XX X(i,:)]
    YY=[YY Y(i,:)]
end

domaine = p * A
XX = XX - 1/2
YY = YY - 1/2
XX = XX / A
YY = YY / B

XX=XX*domaine-domaine/2
YY=YY*domaine-domaine/2

```

Annexe 2 : Code de génération des structures conglomérées à partir des coordonnées calculées à l'aide du code de l'annexe 1

Le code suivant écrit en langage Scilab permet de générer les distributions conglomérées étudiées au paragraphe II51, à partir des positions XX calculées à partir du code de l'annexe 1.

```

XX_bis = XX
XX_s = XX
YY_bis = YY
YY_s = YY
points_fixes = []
peripherique = []
dependances = zeros(1,100)
d=1000
for indice = 1 : A*B
    ecart=1
    diametre = diametre + ecart
    if find(points_fixes==indice)==[]
        distances = []
        for indice_bis = 1 : A*B
            if indice~=indice_bis
                distances = [distances sqrt((XX_s(indice)-XX_s(indice_bis))^2+(YY_s(indice)-YY_s(indice_bis))^2)]
            else
                distances = [distances 1/0]
            end
        end
        indice2 = find(distances==min(distances))
        if min(distances) < d
            indice2=indice2(1)
            dependances(indice)=indice2
        end
    end
end

```

```

alpha = atan(abs(YY_s(indice2)-YY_s(indice))/abs(XX_s(indice2)-XX_s(indice)))
if and([XX_s(indice)<XX_s(indice2) YY_s(indice)>YY_s(indice2)])
    alpha = %pi-alpha
elseif and([XX_s(indice)<XX_s(indice2) YY_s(indice)<YY_s(indice2)])
    alpha = alpha + %pi
elseif and([XX_s(indice)>XX_s(indice2) YY_s(indice)<YY_s(indice2)])
    alpha = 2*%pi-alpha
end
xn = XX_s(indice2) + (diametre/2)*2*cos(alpha)
yn = YY_s(indice2) + (diametre/2)*2*sin(alpha)

XX_s(indice)=xn
YY_s(indice)=yn

delta=sqrt((XX_s-XX_s(indice))^2+(YY_s-YY_s(indice))^2)
distance_angulaire=0
delta(find(delta==0))=[]
while min(delta)<diametre
    alpha=alpha-0.005
    distance_angulaire = distance_angulaire + 0.005
    XX_s(indice)=XX_s(dependances(indice))+diametre*cos(alpha)
    YY_s(indice)=YY_s(dependances(indice))+diametre*sin(alpha)
    if distance_angulaire > 2*%pi
        XX_s(indice) = XX(indice)
        break
    end
end
end
end
end
points_fixes = [points_fixes indice2]
diametre = 126
end

```

Bibliographie :

- [1] W. Cai et V. Shalaev, *Optical Metamaterials*. New York, NY: Springer New York, 2010. doi: 10.1007/978-1-4419-1151-3.
- [2] D. G. Stavenga, « Invertebrate superposition eyes-structures that behave like metamaterial with negative refractive index », *J. Eur. Opt. Soc. Rapid Publ.*, vol. 1, p. 06010, août 2006, doi: 10.2971/jeos.2006.06010.
- [3] C. L. Holloway, E. F. Kuester, J. A. Gordon, J. O'Hara, J. Booth, et D. R. Smith, « An Overview of the Theory and Applications of Metasurfaces: The Two-Dimensional Equivalents of Metamaterials », *IEEE Antennas Propag. Mag.*, vol. 54, n° 2, 2012.
- [4] D. R. Smith, W. J. Padilla, D. C. Vier, S. C. Nemat-Nasser, et S. Schultz, « Composite Medium with Simultaneously Negative Permeability and Permittivity », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 84, n° 18, Art. n° 18, mai 2000, doi: 10.1103/PhysRevLett.84.4184.
- [5] M. W. Klein, C. Enkrich, M. Wegener, C. M. Soukoulis, et S. Linden, « Single-slit split-ring resonators at optical frequencies: limits of size scaling », *Opt. Lett.*, vol. 31, n° 9, Art. n° 9, mai 2006, doi: 10.1364/OL.31.001259.
- [6] S. Linden, C. Enkrich, M. Wegener, J. Zhou, T. Koschny, et C. M. Soukoulis, « Magnetic Response of Metamaterials at 100 Terahertz », *Science*, vol. 306, n° 5700, Art. n° 5700, nov. 2004, doi: 10.1126/science.1105371.
- [7] G. Dolling, C. Enkrich, M. Wegener, J. F. Zhou, C. M. Soukoulis, et S. Linden, « Cut-wire pairs and plate pairs as magnetic atoms for optical metamaterials », *Opt. Lett.*, vol. 30, n° 23, Art. n° 23, déc. 2005, doi: 10.1364/OL.30.003198.
- [8] D. R. Smith, D. Schurig, et J. J. Mock, « Characterization of a planar artificial magnetic metamaterial surface », *Phys. Rev. E*, vol. 74, n° 3, p. 036604, sept. 2006, doi: 10.1103/PhysRevE.74.036604.
- [9] « Measurement of the Intrinsic Properties of Materials by Time-Domain Techniques ». Consulté le: 24 septembre 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/4313932/>
- [10] N. Yu et al., « Light Propagation with Phase Discontinuities: Generalized Laws of Reflection and Refraction », *Science*, vol. 334, n° 6054, p. 333-337, oct. 2011, doi: 10.1126/science.1210713.
- [11] S. A. Maier, *Plasmonics: Fundamentals and Applications*. New York, NY: Springer US, 2007. doi: 10.1007/0-387-37825-1.
- [12] M. N. M. Van Lieshout, *Markov point processes and their applications*. World Scientific, 2000.
- [13] D. Hawat, G. Gautier, R. Bardenet, et R. Lachièze-Rey, « On estimating the structure factor of a point process, with applications to hyperuniformity », *Stat. Comput.*, vol. 33, n° 3, p. 61, juin 2023, doi: 10.1007/s11222-023-10219-1.
- [14] S. Torquato, « Hyperuniform states of matter », *Phys. Rep.*, vol. 745, p. 1-95, juin 2018, doi: 10.1016/j.physrep.2018.03.001.
- [15] A. T. Chieco, R. Dreyfus, et D. J. Durian, « Characterizing pixel and point patterns with a hyperuniformity disorder length », *Phys. Rev. E*, vol. 96, n° 3, p. 032909, sept. 2017, doi: 10.1103/PhysRevE.96.032909.
- [16] S. Torquato et F. H. Stillinger, « Local density fluctuations, hyperuniformity, and order metrics », *Phys. Rev. E*, vol. 68, n° 4, p. 041113, oct. 2003, doi: 10.1103/PhysRevE.68.041113.
- [17] Y. Jiao, T. Lau, H. Hatzikirou, M. Meyer-Hermann, Joseph C. Corbo, et S. Torquato, « Avian photoreceptor patterns represent a disordered hyperuniform solution to a multiscale packing problem », *Phys. Rev. E*, vol. 89, n° 2, p. 022721, févr. 2014, doi: 10.1103/PhysRevE.89.022721.
- [18] A. Mayer, V. Balasubramanian, T. Mora, et A. M. Walczak, « How a well-adapted immune system is organized », *Proc. Natl. Acad. Sci.*, vol. 112, n° 19, p. 5950-5955, mai 2015, doi: 10.1073/pnas.1421827112.

- [19] Y. Xu, S. Chen, P.-E. Chen, W. Xu, et Y. Jiao, « Microstructure and mechanical properties of hyperuniform heterogeneous materials », *Phys. Rev. E*, vol. 96, n° 4, p. 043301, oct. 2017, doi: 10.1103/PhysRevE.96.043301.
- [20] O. U. Uche, F. H. Stillinger, et S. Torquato, « Constraints on collective density variables: Two dimensions », *Phys. Rev. E*, vol. 70, n° 4, p. 046122, oct. 2004, doi: 10.1103/PhysRevE.70.046122.
- [21] S. Fraden et G. Maret, « Multiple light scattering from concentrated, interacting suspensions », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 65, n° 4, p. 512-515, juill. 1990, doi: 10.1103/PhysRevLett.65.512.
- [22] J.-P. Berenger, « A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves », *J. Comput. Phys.*, vol. 114, n° 2, p. 185-200, oct. 1994, doi: 10.1006/jcph.1994.1159.
- [23] W. W. Salisbury, Absorbent body for electromagnetic waves. Google Patents, 1952.
- [24] W. Dallenbach et W. Kleinstueber, « Reflection and absorption of decimeter-waves by plane dielectric layers », *Hochfreq U Elektroak*, vol. 51, p. 152-156, 1938.
- [25] B. A. Munk, *Frequency Selective Surfaces: Theory and Design*, 1^{re} éd. Wiley, 2000. doi: 10.1002/0471723770.
- [26] N. Engheta, « Thin absorbing screens using metamaterial surfaces », in *IEEE Antennas and Propagation Society International Symposium (IEEE Cat. No.02CH37313)*, San Antonio, TX, USA: IEEE, 2002, p. 392-395. doi: 10.1109/APS.2002.1016106.
- [27] S. A. Tretyakov et S. I. Maslovski, « Thin absorbing structure for all incidence angles based on the use of a high-impedance surface », *Microw. Opt. Technol. Lett.*, vol. 38, n° 3, p. 175-178, août 2003, doi: 10.1002/mop.11006.
- [28] S. Ma, S. Xiao, et L. Zhou, « Resonant modes in metal/insulator/metal metamaterials: An analytical study on near-field couplings », *Phys. Rev. B*, vol. 93, n° 4, p. 045305, janv. 2016, doi: 10.1103/PhysRevB.93.045305.
- [29] H.-T. Chen, « Interference theory of metamaterial perfect absorbers », *Opt. Express*, vol. 20, n° 7, p. 7165, mars 2012, doi: 10.1364/OE.20.007165.
- [30] F. Ding, Y. Yang, R. A. Deshpande, et S. I. Bozhevolnyi, « A review of gap-surface plasmon metasurfaces: fundamentals and applications », *Nanophotonics*, vol. 7, n° 6, p. 1129-1156, juin 2018, doi: 10.1515/nanoph-2017-0125.
- [31] N. I. Landy, S. Sajuyigbe, J. J. Mock, D. R. Smith, et W. J. Padilla, « Perfect Metamaterial Absorber », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 100, n° 20, p. 207402, mai 2008, doi: 10.1103/PhysRevLett.100.207402.
- [32] C. Qu et al., « Tailor the Functionalities of Metasurfaces Based on a Complete Phase Diagram », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 115, n° 23, p. 235503, déc. 2015, doi: 10.1103/PhysRevLett.115.235503.
- [33] A. Pors, O. Albrektsen, I. P. Radko, et S. I. Bozhevolnyi, « Gap plasmon-based metasurfaces for total control of reflected light », *Sci. Rep.*, vol. 3, n° 1, p. 2155, juill. 2013, doi: 10.1038/srep02155.
- [34] N. Fernez et al., « Radiative Quality Factor in Thin Resonant Metamaterial Absorbers », *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.*, vol. 66, n° 4, p. 1764-1772, avr. 2018, doi: 10.1109/TMTT.2017.2784808.
- [35] Y. Shen, Z. Pei, Y. Pang, J. Wang, A. Zhang, et S. Qu, « Phase random metasurfaces for broadband wide-angle radar cross section reduction », *Microw. Opt. Technol. Lett.*, vol. 57, n° 12, p. 2813-2819, déc. 2015, doi: 10.1002/mop.29444.
- [36] A. Ghaddar, B. Garnier, F. Rault, E. Lheurette, et L. Burgnies, « Embroidered Spoof Surface Plasmon Polariton Transmission Line for Wireless Body Sensor Network », *IET Microw. Antennas Propag.*, vol. 16, n° 4, p. 187-193, mars 2022, doi: 10.1049/mia2.12224.
- [37] T. Khalid, L. Albasha, N. Qaddoumi, et S. Yehia, « Feasibility Study of Using Electrically Conductive Concrete for Electromagnetic Shielding Applications as a Substitute for Carbon-Laced Polyurethane Absorbers in Anechoic Chambers », *IEEE Trans. Antennas Propag.*, vol. 65, n° 5, p. 2428-2435, mai 2017, doi: 10.1109/TAP.2017.2670538.

- [38] S. Venkatachalam, G. Ducournau, J.-F. Lampin, et D. Hourlier, « Net-shaped pyramidal carbon-based ceramic materials designed for terahertz absorbers », *Mater. Des.*, vol. 120, p. 1-9, avr. 2017, doi: 10.1016/j.matdes.2017.02.002.
- [39] Y. Jia, H. Yin, H. Yao, J. Wang, et C. Fan, « Realization of multi-band perfect absorber in graphene based metal-insulator-metal metamaterials », *Results Phys.*, vol. 25, p. 104301, juin 2021, doi: 10.1016/j.rinp.2021.104301.
- [40] H. Luo, T. Wang, R.-Z. Gong, Y. Nie, et X. Wang, « Extending the Bandwidth of Electric Ring Resonator Metamaterial Absorber », *Chin. Phys. Lett.*, vol. 28, n° 3, p. 034204, mars 2011, doi: 10.1088/0256-307X/28/3/034204.
- [41] Y. Cui et al., « Ultrabroadband Light Absorption by a Sawtooth Anisotropic Metamaterial Slab », *Nano Lett.*, vol. 12, n° 3, p. 1443-1447, mars 2012, doi: 10.1021/nl204118h.
- [42] X. Shen, T. J. Cui, J. Zhao, H. F. Ma, W. X. Jiang, et H. Li, « Polarization-independent wide-angle triple-band metamaterial absorber », *Opt. Express*, vol. 19, n° 10, p. 9401, mai 2011, doi: 10.1364/OE.19.009401.
- [43] M. J. Lockyear, A. P. Hibbins, J. R. Sambles, P. A. Hobson, et C. R. Lawrence, « Thin resonant structures for angle and polarization independent microwave absorption », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, n° 4, p. 041913, janv. 2009, doi: 10.1063/1.3059568.
- [44] W. Zhou, P. Wang, N. Wang, W. Jiang, X. Dong, et S. Hu, « Microwave metamaterial absorber based on multiple square ring structures », *AIP Adv.*, vol. 5, n° 11, p. 117109, nov. 2015, doi: 10.1063/1.4935436.
- [45] S. Gu, J. P. Barrett, T. H. Hand, B.-I. Popa, et S. A. Cummer, « A broadband low-reflection metamaterial absorber », *J. Appl. Phys.*, vol. 108, n° 6, p. 064913, sept. 2010, doi: 10.1063/1.3485808.
- [46] C. Gu et al., « Planar metamaterial absorber based on lumped elements », *Chin. Phys. Lett.*, vol. 27, n° 11, p. 117802, 2010.
- [47] *Handbook of Optical Constants of Solids*. Elsevier, 1985. doi: 10.1016/C2009-0-20920-2.
- [48] R. L. Olmon et al., « Optical dielectric function of gold », *Phys. Rev. B*, vol. 86, n° 23, p. 235147, déc. 2012, doi: 10.1103/PhysRevB.86.235147.
- [49] J. Hao, J. Wang, X. Liu, W. J. Padilla, L. Zhou, et M. Qiu, « High performance optical absorber based on a plasmonic metamaterial », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 96, n° 25, p. 251104, juin 2010, doi: 10.1063/1.3442904.
- [50] R. Smaali, F. Omeis, A. Moreau, T. Taliercio, et E. Centeno, « A universal design to realize a tunable perfect absorber from infrared to microwaves », *Sci. Rep.*, vol. 6, n° 1, p. 32589, sept. 2016, doi: 10.1038/srep32589.
- [51] R. Alaei et al., « Deep-Subwavelength Plasmonic Nanoresonators Exploiting Extreme Coupling », *Nano Lett.*, vol. 13, n° 8, Art. n° 8, août 2013, doi: 10.1021/nl4007694.
- [52] Z. Li, S. Butun, et K. Aydin, « Large-Area, Lithography-Free Super Absorbers and Color Filters at Visible Frequencies Using Ultrathin Metallic Films », *ACS Photonics*, vol. 2, n° 2, p. 183-188, févr. 2015, doi: 10.1021/ph500410u.
- [53] Q. Xu et al., « A spectrally selective visible microbolometer based on planar subwavelength thin films », *Nanoscale Adv.*, vol. 5, n° 7, p. 2054-2060, 2023, doi: 10.1039/D2NA00937D.
- [54] N. Liu, M. Mesch, T. Weiss, M. Hentschel, et H. Giessen, « Infrared Perfect Absorber and Its Application As Plasmonic Sensor », *Nano Lett.*, vol. 10, n° 7, Art. n° 7, juill. 2010, doi: 10.1021/nl9041033.
- [55] A. L. Efros et V. G. Karpov, « Electric Power and Current Collection in Semiconductor Devices with Suppressed Electron–Hole Recombination », *ACS Energy Lett.*, vol. 7, n° 10, p. 3557-3563, oct. 2022, doi: 10.1021/acsenerylett.2c01912.
- [56] K. Liu et al., « Wide-Angle and Polarization-Insensitive Perfect Absorber for Organic Photovoltaic Layers », *IEEE Photonics Technol. Lett.*, vol. 25, n° 13, p. 1266-1269, juill. 2013, doi: 10.1109/LPT.2013.2264047.

- [57] C. Wu et al., « Metamaterial-based integrated plasmonic absorber/emitter for solar thermo-photovoltaic systems », *J. Opt.*, vol. 14, n° 2, p. 024005, févr. 2012, doi: 10.1088/2040-8978/14/2/024005.
- [58] C.-W. Cheng, M. N. Abbas, C.-W. Chiu, K.-T. Lai, M.-H. Shih, et Y.-C. Chang, « Wide-angle polarization independent infrared broadband absorbers based on metallic multi-sized disk arrays », *Opt. Express*, vol. 20, n° 9, Art. n° 9, avr. 2012, doi: 10.1364/OE.20.010376.
- [59] K. Aydin, V. E. Ferry, R. M. Briggs, et H. A. Atwater, « Broadband polarization-independent resonant light absorption using ultrathin plasmonic super absorbers », *Nat. Commun.*, vol. 2, n° 1, Art. n° 1, nov. 2011, doi: 10.1038/ncomms1528.
- [60] F. Ding, J. Dai, Y. Chen, J. Zhu, Y. Jin, et S. I. Bozhevolnyi, « Broadband near-infrared metamaterial absorbers utilizing highly lossy metals », *Sci. Rep.*, vol. 6, n° 1, Art. n° 1, déc. 2016, doi: 10.1038/srep39445.
- [61] S. Gigan et al., « Roadmap on wavefront shaping and deep imaging in complex media », *J. Phys. Photonics*, vol. 4, n° 4, p. 042501, oct. 2022, doi: 10.1088/2515-7647/ac76f9.
- [62] I. M. Vellekoop, A. Lagendijk, et A. P. Mosk, « Exploiting disorder for perfect focusing », *Nat. Photonics*, vol. 4, n° 5, p. 320-322, mai 2010, doi: 10.1038/nphoton.2010.3.
- [63] O. Leseur, R. Pierrat, et R. Carminati, « High-density hyperuniform materials can be transparent », *Optica*, vol. 3, n° 7, p. 763, juill. 2016, doi: 10.1364/OPTICA.3.000763.
- [64] F. Bigourdan, R. Pierrat, et R. Carminati, « Enhanced absorption of waves in stealth hyperuniform disordered media », *Opt. Express*, vol. 27, n° 6, p. 8666, mars 2019, doi: 10.1364/OE.27.008666.
- [65] P. K. Jain, W. Huang, et M. A. El-Sayed, « On the Universal Scaling Behavior of the Distance Decay of Plasmon Coupling in Metal Nanoparticle Pairs: A Plasmon Ruler Equation », *Nano Lett.*, vol. 7, n° 7, p. 2080-2088, juill. 2007, doi: 10.1021/nl071008a.
- [66] P. K. Jain, S. Eustis, et M. A. El-Sayed, « Plasmon Coupling in Nanorod Assemblies: Optical Absorption, Discrete Dipole Approximation Simulation, and Exciton-Coupling Model », *J. Phys. Chem. B*, vol. 110, n° 37, p. 18243-18253, sept. 2006, doi: 10.1021/jp063879z.
- [67] X. Wang, P. Gogol, E. Cambri, et B. Palpant, « Near- and Far-Field Effects on the Plasmon Coupling in Gold Nanoparticle Arrays », *J. Phys. Chem. C*, vol. 116, n° 46, p. 24741-24747, nov. 2012, doi: 10.1021/jp306292r.
- [68] C. Helgert et al., « Effects of anisotropic disorder in an optical metamaterial », *Appl. Phys. A*, vol. 103, n° 3, p. 591-595, juin 2011, doi: 10.1007/s00339-010-6190-2.
- [69] E. Prodan, C. Radloff, N. J. Halas, et P. Nordlander, « A Hybridization Model for the Plasmon Response of Complex Nanostructures », *Science*, vol. 302, n° 5644, p. 419-422, oct. 2003, doi: 10.1126/science.1089171.
- [70] P. Nordlander, C. Oubre, E. Prodan, K. Li, et M. I. Stockman, « Plasmon Hybridization in Nanoparticle Dimers », *Nano Lett.*, vol. 4, n° 5, p. 899-903, mai 2004, doi: 10.1021/nl049681c.
- [71] Y. Gao, N. Zhou, Z. Shi, X. Guo, et L. Tong, « Dark dimer mode excitation and strong coupling with a nanorod dipole », *Photonics Res.*, vol. 6, n° 9, p. 887, sept. 2018, doi: 10.1364/PRJ.6.000887.
- [72] D. W. Brandl, N. A. Mirin, et P. Nordlander, « Plasmon Modes of Nanosphere Trimers and Quadrumers », *J. Phys. Chem. B*, vol. 110, n° 25, p. 12302-12310, juin 2006, doi: 10.1021/jp0613485.
- [73] F. Zhang, F. Tang, X. Xu, P.-M. Adam, J. Martin, et J. Plain, « Influence of order-to-disorder transitions on the optical properties of the aluminum plasmonic metasurface », *Nanoscale*, vol. 12, n° 45, p. 23173-23182, 2020, doi: 10.1039/D0NR06334G.
- [74] P. Chevalier et al., « Absorbing metasurface created by diffractionless disordered arrays of nanoantennas », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 107, n° 25, p. 251108, déc. 2015, doi: 10.1063/1.4938472.
- [75] E. El Shamy, J. Jaeck, R. Haïdar, et P. Bouchon, « Light scattering by correlated disordered assemblies of nanoantennas », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 115, n° 4, p. 041103, juill. 2019, doi: 10.1063/1.5097461.

- [76] K. Vynck, R. Pacanowski, A. Agreda, A. Dufay, X. Granier, et P. Lalanne, « The visual appearances of disordered optical metasurfaces », *Nat. Mater.*, vol. 21, n° 9, p. 1035-1041, sept. 2022, doi: 10.1038/s41563-022-01255-9.
- [77] J. Hao, É. Lheurette, L. Burgnies, É. Okada, et D. Lippens, « Bandwidth enhancement in disordered metamaterial absorbers », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, n° 8, p. 081102, août 2014, doi: 10.1063/1.4894181.
- [78] N. Fernandez, L. Burgnies, D. Dereudre, D. Lippens, et É. Lheurette, « Poisson distributions in disordered metamaterials absorbers », *J. Appl. Phys.*, vol. 125, n° 21, p. 213106, juin 2019, doi: 10.1063/1.5082619.
- [79] W. Kim, B. S. Simpkins, H. Guo, J. R. Hendrickson, et J. Guo, « Hyperuniform disordered metal-insulator-metal gap plasmon metasurface near perfect light absorber », *Opt. Mater. Express*, vol. 11, n° 12, p. 4083, déc. 2021, doi: 10.1364/OME.439586.
- [80] A. Moreau et al., « Controlled-reflectance surfaces with film-coupled colloidal nanoantennas », *Nature*, vol. 492, n° 7427, p. 86-89, déc. 2012, doi: 10.1038/nature11615.
- [81] Z. Liu et al., « Automatically Acquired Broadband Plasmonic-Metamaterial Black Absorber during the Metallic Film-Formation », *ACS Appl. Mater. Interfaces*, vol. 7, n° 8, p. 4962-4968, mars 2015, doi: 10.1021/acsami.5b00056.
- [82] S. Li, M. Panmai, S. Tie, Y. Xu, J. Xiang, et S. Lan, « Regulating disordered plasmonic nanoparticles into polarization sensitive metasurfaces », *Nanophotonics*, vol. 10, n° 5, p. 1553-1563, mars 2021, doi: 10.1515/nanoph-2020-0651.
- [83] C. Salameh et al., « Origin of transparency in scattering biomimetic collagen materials », *Proc. Natl. Acad. Sci.*, vol. 117, n° 22, p. 11947-11953, juin 2020, doi: 10.1073/pnas.2001178117.
- [84] Y. Pennec et al., « Modeling light-sound interaction in nanoscale cavities and waveguides », *Nanophotonics*, vol. 3, n° 6, p. 413-440, déc. 2014, doi: 10.1515/nanoph-2014-0004.
- [85] Q. Rolland et al., « Acousto-optic couplings in two-dimensional phoxonic crystal cavities », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 101, n° 6, p. 061109, août 2012, doi: 10.1063/1.4744539.
- [86] P. W. Anderson, « Absence of Diffusion in Certain Random Lattices », *Phys. Rev.*, vol. 109, n° 5, p. 1492-1505, mars 1958, doi: 10.1103/PhysRev.109.1492.
- [87] F. Costa, A. Monorchio, et G. Manara, « Wideband Scattering Diffusion by using Diffraction of Periodic Surfaces and Optimized Unit Cell Geometries », *Sci. Rep.*, vol. 6, n° 1, p. 25458, mai 2016, doi: 10.1038/srep25458.
- [88] K.-H. Su, Q.-H. Wei, X. Zhang, J. J. Mock, D. R. Smith, et S. Schultz, « Interparticle Coupling Effects on Plasmon Resonances of Nanogold Particles », *Nano Lett.*, vol. 3, n° 8, p. 1087-1090, août 2003, doi: 10.1021/nl034197f.
- [89] S. A. Maier et al., « Local detection of electromagnetic energy transport below the diffraction limit in metal nanoparticle plasmon waveguides », *Nat. Mater.*, vol. 2, n° 4, p. 229-232, avr. 2003, doi: 10.1038/nmat852.
- [90] G. Ghosh, « Dispersion-equation coefficients for the refractive index and birefringence of calcite and quartz crystals », *Opt. Commun.*, vol. 163, n° 1-3, Art. n° 1-3, mai 1999, doi: 10.1016/S0030-4018(99)00091-7.
- [91] W. K. Hastings, « Monte Carlo sampling methods using Markov chains and their applications », *Biometrika*, vol. 57, n° 1, p. 97-109, avr. 1970, doi: 10.1093/biomet/57.1.97.
- [92] D. Dereudre, D. Flimmel, M. Huesmann, et T. Leblé, « (Non)-hyperuniformity of perturbed lattices », 2024, arXiv. doi: 10.48550/ARXIV.2405.19881.
- [93] K. Kolwas et A. Derkachova, « Impact of the Interband Transitions in Gold and Silver on the Dynamics of Propagating and Localized Surface Plasmons », *Nanomaterials*, vol. 10, n° 7, p. 1411, juill. 2020, doi: 10.3390/nano10071411.
- [94] R. Salut, « Etude des moyens de lithographie haute résolution pour la fabrication de résonateurs à ondes élastiques de surface: application aux sources embarquées », Université de Franche-Comté, 2011.

- [95] M. Shahid, S. Sagadevan, W. Ahmed, Y. Zhan, et P. Opaprakasit, « Metal oxides for optoelectronic and photonic applications: A general introduction », in *Metal Oxides for Optoelectronics and Optics-Based Medical Applications*, Elsevier, 2022, p. 3-31. doi: 10.1016/B978-0-323-85824-3.00006-3.
- [96] K. Gupta, N. K. Jain, et R. Laubscher, « Advanced gear manufacturing and finishing: classical and modern processes », 2017.
- [97] G. Baffou, « Quantitative phase microscopy using quadriwave lateral shearing interferometry (QLSI): principle, terminology, algorithm and grating shadow description », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 54, n° 29, p. 294002, juill. 2021, doi: 10.1088/1361-6463/abfbf9.
- [98] T. Deletang, « Localisation de phonons et de photons dans des métasurfaces aléatoires: vers un couplage acousto-optique », 2023.
- [99] R. W. Wood, « XLII. On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum », *Lond. Edinb. Dublin Philos. Mag. J. Sci.*, vol. 4, n° 21, p. 396-402, sept. 1902, doi: 10.1080/14786440209462857.
- [100] Lord Rayleigh, « On the Dynamical Theory of Gratings », *Proc. R. Soc. Lond. Ser. A*, vol. 79, p. 399-416, août 1907, doi: 10.1098/rspa.1907.0051.
- [101] J. Strong, « Effect of Evaporated Films on Energy Distribution in Grating Spectra », *Phys. Rev.*, vol. 49, n° 4, p. 291-296, févr. 1936, doi: 10.1103/PhysRev.49.291.
- [102] P. Johnson et R. Christy, « Optical constants of transition metals: Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, and Pd », *Phys. Rev. B*, vol. 9, n° 12, p. 5056-5070, juin 1974, doi: 10.1103/PhysRevB.9.5056.

Liste des figures

Figure 1 Schéma des méta-atomes sur la surface d'une métasurface. Reproduit de [3].	11
Figure 2 Lois de Snell-Descartes généralisées en présence d'une interface anisotrope. Reproduit de [10]	13
Figure 3 a) Diagramme de dispersion d'une interface métal/air et métal/SiO ₂ b) Schéma de l'empilement des trois couches. Les flèches représentent la direction du champ E dans le cas du mode antisymétrique (associé à la lettre A), et symétrique (lettre S). Reproduit de [11].	15
Figure 4 a) Facteur de structure d'une distribution de Poisson (une réalisation particulière est montrée en encart) et b) Moyenne angulaire du facteur de structure d'un réseau triangulaire (la distribution correspondante est représentée en encart). Reproduit de [14]	18
Figure 5 a) Schéma de la structure étudiée b) Longueur d'onde de la résonance fondamentale en fonction de l'épaisseur h_a de la couche diélectrique, normalisées par la période du réseau et c) Répartition spatiale de la composante H_y du champ magnétique pour deux valeurs de h_a . Reproduit de [28].	22
Figure 6 a) Cellule élémentaire et b) Répartition des pertes dans les matériaux. Reproduit de [31]	23
Figure 7 a) Absorption et b) phase du champ réfléchi par une MS MIM en fonction des coefficients de qualité. Reproduit de [32].	25
Figure 8 a) Couple de MA utilisé b) Cinq couples de MA de dimensions différentes et leur dimensions respectives et c) Spectre d'absorption des MS composées respectivement des cinq couples de MA. Reproduit de [40]	27
Figure 9 a) Schéma du b) Absorption spectrale de la MS pour différentes conditions de charges et c) Tension simulée dans les charges capacitives et résistives. Reproduit de [46].	27
Figure 10 Permittivité relative de l'or selon le modèle de Palik dans le domaine fréquentiel [150 ; 3000] THz.	28
Figure 11 a) Configuration et paramètres géométriques de la MS étudiée b) Fréquence de résonance en fonction de la période d des fentes. Reproduit de [50]	29
Figure 12 a) Géométrie de la cellule élémentaire employée et b) Spectre d'absorption de la MS fabriquée. Reproduit de [60].	31
Figure 13 a) Figure de speckle d'un milieu désordonné. Reproduit de [61] et b) diagramme angulaire de l'intensité moyenne du champ diffusé, pour un désordre hyperuniforme furtif (bleu), comparé à un désordre aléatoire (rouge), pour deux vecteurs d'onde incidents différents. Reproduit de [63]	33
Figure 14 a) Coefficient de qualité radiatif en fonction de la période pour différent niveaux de pertes dans le BST et b) Niveau d'absorption en fonction de la période. Reproduit de [34].	34
Figure 15 a) Image de microscope électronique à balayage (MEB) des dimères étudiés et Spectre d'extinction du réseau de dimère en fonction de la distance entre les NP pour b) une polarisation incidente dans la direction du dimère et c) perpendiculairement à la direction. Reproduit de [65]	35
Figure 16 a) Image MEB du MM pour un désordre anisotrope de paramètre $D=3$ b) Coefficient de transmission et c) Coefficient de réflexion du MM pour un paramètre $D=3$ et un désordre anisotrope, pour deux polarisations incidentes différentes. Reproduit de [68].	37
Figure 17 a) Paramètres géométriques du dimère étudié et représentation de l'évolution des énergies des modes de résonance individuels (rouge) et collectif (bleu). Les lignes en pointillé vert représentent l'influence des modes de résonance supérieurs sur l'énergie du mode fondamental ($l=1$). Reproduit de [70] b) Section efficace de diffusion du trimère en fonction de la distance entre la barre verticale et le dimère « sombre ». En encart est représenté le champ dans le trimère ainsi que la répartition des charges électriques. Reproduit de [71].	38

Figure 18 Spectre d'absorption en fonction de l'énergie pour un trimère en configuration équilatérale de distance $d=21$ nm. Reproduit de [72]	39
Figure 19 Etude d'une MS de période $p=250$ nm composée de cylindres de rayon $r=50$ nm a) Spectre d'extinction simulé pour différentes amplitudes de déplacement variant de 0 à 100 nm par pas de 25 nm b) Spectre d'extinction simulé pour différentes amplitudes de variation du rayon de 0 à 20 nm par pas de 10 nm et c) Image MEB d'une MS de période $p=400$ nm composée de tiges de longueur 140 nm et largeur 50 nm pour une amplitude de rotation de 90° et Spectre d'extinction de la MS en fonction de la polarisation incidente, pour deux amplitudes différentes de rotation : 0° (milieu) et 90° (droite). Reproduit de [73]	40
Figure 20 a) Image MEB d'une configuration désordonnée associée à une amplitude maximale de déplacement $1\mu\text{m}$, et spectres de réflexion pour un angle θ d'incidence de 15° et 23° . Reproduit de [74] b) Géométrie étudiée et répartition de l'énergie incidente dans la MS pour différentes amplitude de déplacement à $\lambda=5,15\mu\text{m}$ et un angle d'incidence $\theta=50^\circ$. Reproduit de [75]	41
Figure 21 a) Exemple d'une MS de dimension $21 \times 29,7$ cm ² composée de 371 anneaux b) Spectre d'absorption en fonction du nombre d'anneaux. Reproduit de [77]	43
Figure 22 a) Exemple d'une distribution de disques de rayon $r=4,2$ mm de densité $z=0,45$ cm ⁻² sur une surface de 20×30 cm ² b) Nombre d'élément résonants en fonction de la densité classés en fonction du nombre de disques superposés et c) Absorption maximale et moyenne en fonction de la densité. Reproduit de [78]	43
Figure 23 a) Image MEB d'une partie de la distribution des MA cubiques de densité 17,1% b) Spectre de réflexion pour une densité de 7,3% (courbe épaisse) et 17,1% (courbe fine). Reproduit de [80]	44
Figure 24 a) Schéma des différents stades de formation des MA en fonction du temps de déposition b) Spectres d'absorption (ligne continue) et de réflexion (ligne pointillée) pour la MS d'épaisseur 7 nm de la couche supérieure. Reproduit de [81]	45
Figure 25 Répartition typique des champs a) électrique et b) élastique dans une structure phoXonique. La couleur rouge indique les endroits de forte intensité des champs	47
Figure 26 Maille élémentaire et dimensions utilisées pour tester les paramètres du maillage	53
Figure 27 Représentation des cellules du maillage généré a) avant et b) après l'étape de maillage adaptatif	55
Figure 28 $ S_{11} $ en fonction de la fréquence pour différents couples (cplo,delta S)	55
Figure 29 Maillage diélectrique a) sans condition spécifique pour la couche isolante, et b) avec une taille maximale de maille de 15 nm	56
Figure 30 $ S_{11} $ en fonction de la fréquence en fonction du maillage dans le diélectrique	56
Figure 31 Schéma des conditions aux limites employées dans les simulations	57
Figure 32 Distributions de 100 piliers de densités a) 5% et b) 50% générées par essais/erreurs successifs selon une loi uniforme. Le diamètre des piliers est fixé à $d=126$ nm pour les deux distributions	62
Figure 33 Nombre de rejets en fonction du nombre d'itérations moyenné sur une fenêtre glissante de 50000 itérations pour $p=520$ nm, $d=126$ nm, $\sigma/p=0,5$ dans une distribution de $N=100 \times 100$ piliers et un nombre d'itérations total de $200 * N$	65
Figure 34 Histogramme des déplacements horizontaux de deux distributions de $N=10^4$ piliers, après $100 * N$ itérations du processus MCMC de période initiale $p=520$ nm et de désordre $\sigma/p=0,3$ pour a) un diamètre nul des piliers et b) un diamètre de 126 nm, ainsi que la densité de probabilité de la loi $N(0,0,3^2)$	66
Figure 35 Histogramme des déplacements horizontaux d'une distribution de $N=10^4$ piliers, après $100 * N$ itérations du processus MCMC ainsi que la densité de probabilité de la loi $N(0 ; 0,3^2)$ et de la loi $N(0 ; 0,21^2)$	67

Figure 36 Moyenne du facteur de structure de 10 distributions de 100x100 piliers de diamètre $d=126$ nm et de période initiale $p=520$ nm pour différentes valeurs de désordre σ/p . L'encart représente un zoom sur les valeurs du premier pic de Bragg	70
Figure 37 Zoom sur le domaine $k \sim 0$ des facteurs de structure de la Figure 36	71
Figure 38 Moyenne du facteur de structure de 10 distributions de 100x100 piliers de diamètre $d=0$ nm et de période initiale $p=158$ nm pour différentes valeurs de désordre σ/p . L'encart représente un zoom sur les valeurs au niveau du premier pic de Bragg.....	72
Figure 39 Zoom sur le domaine $k \sim 0$ à gauche du trait vertical de la Figure 38	73
Figure 40 Moyenne du facteur de structure de 10 distributions de 100x100 piliers de diamètre $d=126$ nm et de période initiale $p=158$ nm pour différentes valeurs de désordre σ/p (encart : zoom sur le premier pic de Bragg)	73
Figure 41 Zoom sur le domaine $k \sim 0$ à gauche du trait gris vertical de la figure précédente	74
Figure 42 $ S_{11} $ en fonction de la fréquence pour différentes valeurs de d	77
Figure 43 $ S_{11} $ en fonction de la fréquence pour différentes valeurs de h	78
Figure 44 $ S_{11} $ en fonction de la fréquence pour différentes valeurs de p	78
Figure 45 $ S_{11} $ en fonction de la fréquence pour différentes valeurs de h_d	79
Figure 46 $ S_{11} $ pour la MS de paramètres géométriques $h_m=100$ nm, $h_d=20$ nm, $h=60$ nm, $d=126$ nm, $p=520$ nm	79
Figure 47 Carte de champ \mathbf{E} dans une cellule élémentaire de période $p=520$ nm à 375 THz a) en coupe verticale dans le plan (yz) passant par le milieu du pilier et b) composante E_z du champ \mathbf{E} en coupe horizontale dans le plan (xy) d'équation $z=120$ nm à la base du pilier	80
Figure 48 Carte de champ \mathbf{H} dans une cellule élémentaire de période $p=520$ nm à 375 THz a) en coupe verticale dans le plan (yz) passant par le milieu du pilier et b) composante H_x du champ \mathbf{H} en coupe horizontale dans le plan (xy) d'équation $z=120$ nm à la base du pilier	80
Figure 49 Carte de champ \mathbf{P} dans une cellule élémentaire de période $p=520$ nm à 375 THz a) en coupe verticale dans le plan (yz) passant par le milieu du pilier et b) composante P_y du champ \mathbf{P} en coupe horizontale dans le plan (xy) d'équation $z=120$ nm à la base du pilier	80
Figure 50 a) Structure simulée et conditions aux limites employées et b) $ S_{11} $ correspondant en fonction de la fréquence.....	81
Figure 51 Cartes de champ a) électrique b) magnétique et c) du vecteur de Poynting dans le plan $x=0$ à $f=380$ THz.....	81
Figure 52 Bilan des puissances mises en jeu dans l'interaction de la structure avec l'onde incidente.	83
Figure 53 Extinction et absorption pour $p=158$ nm et $\sigma/p=$ a) 0,1 et b) 0,4	84
Figure 54 Extinction et absorption pour $p=520$ nm et $\sigma/p=$ a) 0,1 et b) 0,4	85
Figure 55 Absorption et extinction pour $p=158$ nm $\sigma/p=0,4$ en fonction de la position verticale du PF	86
Figure 56 Absorption en fonction de la fréquence pour $p=520$ nm (densité = 5%) en fonction de σ/p	88
Figure 57 Absorption en fonction de la fréquence pour $p=353$ nm (densité = 10%) en fonction de σ/p	89

Figure 58 Absorption en fonction de la fréquence pour $p=288$ nm (densité = 15%) en fonction de σ/p	90
Figure 59 Absorption en fonction de la fréquence pour $p=204$ nm (densité = 30%) en fonction de σ/p	90
Figure 60 Absorption en fonction de la fréquence pour $p=158$ nm (densité = 50%) en fonction de σ/p	90
Figure 61 a) Absorption moyenne b) Maximum d'absorption et c) Largeur de bande normalisée en fonction de σ/p pour différentes densités	92
Figure 62 Diffusion moyenne en fonction de σ/p pour différentes densités	93
Figure 63 Ecart type empirique en fonction de l'écart type de la loi cible pour les fortes densités.....	94
Figure 64 Carte de champ E en vue de dessus dans une MS de paramètres $p=158$ nm et $\sigma/p=1$ à la fréquence a) 232 THz et b) 288 THz pour une onde polarisée selon y	95
Figure 65 Géométrie étudiée, de paramètres $p=520$ nm, $d=126$ nm, pour des valeurs ρ et θ variables.....	95
Figure 66 Absorption en fonction de la distance bord à bord ρ a) pour $\theta=0^\circ$ (cf encart avec $\rho=50$ nm) et b) pour $\theta=90^\circ$ (cf encart avec $\rho=50$ nm). L'encart montre aussi les cartes de champ de la composante E_z du champ E et H_x du champ H à la fréquence 364 THz pour un paramètre $\rho=5$ nm. Le système de coordonnées est indiqué sur la figure. Cartes de champ en coupe horizontale dans le plan $z=120$ nm avec $\rho=5$ nm à 307 THz c) champ E et d) champ H et cartes de champ en coupe verticale dans le plan $x=0$ à 440 THz e) champ E et f) champ H	96
Figure 67 a) Absorption en fonction de la distance bord à bord ρ pour $\theta=45^\circ$ (cf encart avec $\rho=50$ nm) et cartes de champ en coupe horizontale dans le plan $z=120$ nm pour $\rho=50$ nm à $f=371$ THz b) champ E c) champ H et $f=440$ THz d) champ E e) champ H	98
Figure 68 Cartes de champ en coupe verticale dans le plan $z=120$ nm et $\rho=1$ nm aux fréquences $f=311$ THz a) champ E b) champ H et $f=362$ THz c) champ E et d) champ H	99
Figure 69 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=0$ et différentes valeurs de densité ...	100
Figure 70 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=0,1$ et différentes valeurs de densité	100
Figure 71 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=0,2$ et différentes valeurs de densité	101
Figure 72 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=0,3$ et différentes valeurs de densité	101
Figure 73 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=0,4$ et différentes valeurs de densité	101
Figure 74 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=1$ et différentes valeurs de densité ...	102
Figure 75 Absorption en fonction de la fréquence pour un désordre $\sigma/p=\infty$ et différentes valeurs de densité ..	102
Figure 76 a) Absorption moyenne en fonction de la densité pour différentes valeurs de σ/p b) Maximum d'absorption en fonction de la densité pour différentes valeurs de σ/p et c) Largeur de bande normalisée en fonction de la densité pour différentes valeurs de σ/p	103
Figure 77 Absorption en fonction de la fréquence pour une distribution périodique de période $p=520$ nm et trois valeurs de polarisation.....	104
Figure 78 Absorption en fonction de la fréquence pour une distribution périodique de période $p_x=350$ nm et $p_y=650$ nm pour deux polarisations orthogonales de l'onde incidente et cartes de champ en coupe horizontale dans le plan $z=120$ nm à $f=443,5$ THz b) champ E et c) champ H	105
Figure 79 Absorption en fonction de la fréquence pour une distribution désordonnée de paramètres $p=158$ nm et $\sigma/p=1$ pour une polarisation TE et TM de l'onde incidente.....	105

Figure 80 Absorption en fonction de la fréquence pour une distribution de piliers désordonnés selon la direction x et de paramètres $p=158$ nm et $\sigma/p=1$	106
Figure 81 Distributions de piliers générées par a) le processus MCMC de paramètre $\sigma/p=1$ et b) la version conglomérée de la distribution a)	108
Figure 82 Absorption en fonction de la fréquence pour deux MS initiale et conglomérée, de paramètres $p=158$ nm et $\sigma/p=1$	108
Figure 83 a) Absorption en fonction de la fréquence pour des distributions de piliers de paramètres $p=158$ nm et $\sigma/p=1$ en fonction de d_{\min} et b) Absorption moyenne en fonction de d_{\min} pour $p=158$ nm, $\sigma/p=1$. L'étoile bleue représente l'absorption dans le cas périodique de même densité	109
Figure 84 Principe de la lithographie pour la fabrication de nanostructures en trois étapes : a) Dépôt de la résine b) Exposition de la résine et c) Révélation.....	113
Figure 85 a) Simulation de la trajectoire des électrons d'une énergie incidente de 10 keV dans un échantillon contenant une résine PMMA déposée sur un substrat de Silicium. Reproduit de [94] b) Schéma illustratif du phénomène de recouvrement des zones d'exposition à cause des effets de proximité des électrons au cours de leur propagation dans la résine	114
Figure 86 a) Masque complet de l'échantillon préparatoire de test de distance minimale b) Zoom sur la distribution de paramètre $\Delta=20$ nm.....	116
Figure 87 Schéma du dispositif de fabrication par évaporation. Reproduit de [95].....	117
Figure 88 Schéma du dispositif de croissance de couche par PECVD. Reproduit de [96].....	118
Figure 89 a) Principe de lift off. Les flèches noires indiquent l'action du solvant b) Profil de résine en casquette pour faciliter le lift-off. La flèche indique l'action du solvant. Reproduit de [94]	119
Figure 90 Principe de l'architecture des échantillons pour l'exposition lithographique : d'abord un masque est généré à partir de l'agencement des éléments dans leur repère propre (étapes 1 et 2 ; l'origine du repère est représentée par les croix rouges). Ensuite, le repère associé au masque est affecté à une position de l'échantillon (croix verte) pour réaliser l'exposition (étape 3).....	121
Figure 91 a) Masque complet de l'échantillon périodique et b) Zoom sur le sous-domaine de période $p=520$ nm	122
Figure 92 a) Masque de l'échantillon désordonné et Zooms sur les cellules de piliers de diamètre $d=200$ nm et de densité 20% pour un écart type relatif σ/p de b) 0,1 et c) 12500 et de densité 5% et $\sigma/p=$ d) 0,1 et e) 12500 ...	123
Figure 93 Images MEB de réseaux périodiques de période $p=520$ nm, $d=106$ nm, pour les doses a) 460 et b) 520 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ et c) Zoom sur une partie du réseau de paramètres $p=520$ nm, $d=126$ nm, pour la dose 560 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$.	125
Figure 94 a) Zoom sur le coin en haut à gauche de la distribution de densité 20%, $d=200$ nm, $\sigma/p=12500$ et b) Même zone sur le masque	126
Figure 95 Image MEB inclinée d'un réseau de pilier de l'échantillon désordonné	127
Figure 96 a) Image MEB d'une partie de la distribution périodique de de distance minimale 20 nm et b) histogramme des distances minimales mesurées par traitement de l'image MEB	129
Figure 97 a) Image MEB après traitement par ImageJ et b) Histogramme des diamètres des piliers correspondant	130

Figure 98 a) Traitement d'image pour détecter les piliers sur l'image MEB de la Figure 94 et b) Histogramme de la distribution des diamètres de piliers correspondant.....	130
Figure 99 a) Schéma du dispositif expérimental de champ sombre et b) Image en champ sombre à 800 nm dans le plan de Fourier de l'objectif issue de la réflexion d'un réseau périodique	132
Figure 100 a) Géométrie du réseau de diffraction optique utilisé pour la caméra de phase et b) Schéma du montage expérimental permettant de réaliser la mesure de la caméra de phase commercialisée par l'entreprise Phasics	133
Figure 101 Images en champ sombre à $\lambda =$ a) 790 nm et b) 880 nm.....	135
Figure 102 Courbes a) d'amplitude et b) de phase pour une excitation de longueur d'onde 800 nm en fonction du diamètre des piliers et c) cartes de phase mesurées en fonction de la position sur l'échantillon	136
Figure 103 a) Module et b) Phase du coefficient S_{11} d'une MS périodique de dimensions $(h_m, h_d, h, d) = (100, 20, 60, 126)$ nm autour de la période critique	137
Figure 104 a) Module et b) phase du paramètre S_{11} pour des MS périodiques de dimensions $(h_m, h_d, h) = (100, 20, 60)$ nm pour différents couples diamètre/période donnant un couplage critique	138
Figure 105 a) Module et b) phase du paramètre S_{11} à 379 THz en fonction du diamètre pour les MS de la Figure 104. La valeur de phase de la MS de dimensions $p=505$ nm, $d=124$ nm a été ajoutée sur la Figure 105b)	139
Figure 106 Images champ sombre obtenues sur la cellule périodique de période $p=758$ nm, et de diamètre $d=180$ nm (densité 5%) en fonction de la longueur d'onde du laser	140
Figure 107 a) Courbes de réflexion en champ sombre mesurées sur les réseaux de période $p=758$ nm et $d=180$ nm (densité 5%) pour différents niveaux de désordre et b) courbes simulées d'absorption de réseaux de période $p=520$ nm, $d=126$ nm, $h=100$ nm et $h_d=20$ nm (densité 5%) pour différents niveaux de désordre.....	141
Figure 108 Courbes de réflexion en champ sombre mesurées sur les réseaux de diamètre $d=180$ nm, $p=758$ nm et $d=190$ nm, $p=793$ nm (densité 5%)	142
Figure 109 a) Courbes spectrales d'absorption simulées de MS périodiques de dimensions $(h_m, h_d, h, d) = (100, 20, 100, 126)$ nm en fonction de la période et b) Fréquence de résonance des modes de haute et basse fréquences de la Figure 109a) en fonction de la période. La courbe $p=\lambda$ est également représentée	143
Figure 110 Cartes de champ H en coupe horizontale dans le plan $z=120$ nm à la base du pilier pour $p=575$ nm à la fréquence $f =$ a) 378 THz et b) 480 THz, $p=725$ nm à $f =$ c) 368 THz et d) 405 THz, $p=825$ nm à $f =$ e) 345 THz et f) 381 THz et $p=950$ nm à $f =$ g) 306 THz et h) 377 THz.....	145
Figure 111 a) Courbes de réflexion en champ sombre mesurées sur les réseaux de diamètre $d=180$ nm avec $\sigma/p=0,4$ pour une période $p=758$ nm (densité $\rho=5\%$) et $p=378$ nm (densité $\rho=20\%$) et b) courbes simulées d'absorption de réseaux $d=126$ nm avec $\sigma/p=0,4$ et de période $p=520$ nm (densité 5%) et $p=250$ nm (densité 20%), avec $h=100$ nm et $h_d=20$ nm.....	146
Figure 112 a) Absorption spectrale de la MS périodique de dimensions $(h_m, h_d, h, d, p) = (100, 22,5, 100, 180, 758)$ nm. Cartes de champ en coupe au niveau du plan $z=120$ nm à $f=303$ THz du champ b) E et d) H et $f=385$ THz du champ c) E et e) H	148
Figure 113 a) Absorption spectrale de la structure de la Figure 112 avec et sans couche d'accroche de titane et b) Absorption totale de la structure et dans les deux métaux en présence de couche d'accroche	149
Figure 114 a) Permittivité relative réelle et imaginaire en fonction de la fréquence pour l'or et le titane b) Absorption spectrale pour les MS périodiques de dimensions $(h_m, h_d, h, d) = (100, 22,5, 100, 180)$ nm en fonction de la période	149

Figure 115 Cartes de champ en coupe verticale dans le plan $y=0$ pour une configuration périodique de dimensions $(h_m, h_d, d, p) = (100, 20, 126, 520)$ nm, pour $h=60$ nm à $f=375$ THz a) Champ **E** b) Champ **P** et à $h=10$ nm à 305 THz c) Champ **E** d) Champ **P**..... 151

Figure 116 Absorption spectrale pour le dimère étudié au chapitre II, avec $\theta=90^\circ$ et en fonction de ρ , pour $h=$ a) 10 nm et b) 60 nm. Les figures insérées représentent une cellule élémentaire de la structure simulée dans le cas $\rho=50$ nm..... 152

Figure 117 Epaisseur critique en fonction de la période pour des MS périodiques de dimensions $(h_m, h_d, d) = (100, 20, 126)$ nm. L'encart montre les courbes d'absorption spectrales des MS correspondantes. ... 153

Figure 118 Courbes spectrales d'absorption de distributions désordonnées de dimensions $(h_m, h_d, d) = (100, 20, 126)$ nm et de paramètre $\sigma/p=1$ pour différentes valeurs de h et de densité a) 5% ($p=158$ nm) et b) 50% ($p=158$ nm) 153