

Etude théorique de métamatériaux optiques de type fishnet

Le contrôle et la manipulation des ondes électromagnétiques aux échelles micro et nanométriques peut être réalisé en structurant artificiellement un matériau avec des dimensions caractéristiques plus petites que la longueur d'onde. Les métamatériaux forment une classe particulière de matériaux artificiels structurés qui présentent des propriétés électromagnétiques nouvelles qui n'existent pas dans la nature. En effet, les valeurs naturelles des paramètres ϵ_r (permittivité électrique) et μ_r (perméabilité magnétique) sont assez limités. En particulier, aux fréquences optiques, des valeurs de la permittivité ϵ_r positives et élevées n'existent pas, alors qu'elles seraient très utiles pour de nombreuses applications, et les matériaux naturels ne sont pas magnétiques, $\mu_r = 1$. Ces limitations sont dues à des contraintes physiques fondamentales, voir par exemple [Lan60,Jac98]. Cependant, ces contraintes peuvent être dépassées dans le cas de structures composites basées sur des inclusions mésoscopiques de taille intermédiaire entre la longueur d'onde et les dimensions atomiques [Pen99,Mer09]. Ces arguments donnent une base théorique aux propriétés inhabituelles des métamatériaux électromagnétiques. La plus emblématique est sans doute la réalisation d'indices de réfraction négatifs qui interviennent dans le développement de nouveaux systèmes d'imagerie présentant une résolution qui pourrait battre la limite de diffraction [Pen00].

La réalisation de métamatériaux d'indice négatif a tout d'abord été démontrée aux fréquences micro-ondes [She01]. Après cette première démonstration, la communauté a immédiatement tenté de profiter de l'invariance d'échelle des équations de Maxwell lorsque la longueur d'onde et la taille des structures sont modifiées de la même façon. C'est ainsi que les dimensions des anneaux métalliques coupés (split ring resonators, SRRs), les méta-atomes imaginés pour les fréquences micro-ondes [Pen99], ont été réduites jusqu'à des tailles de quelques dizaines de nanomètres [Kat05,Kle06,Liu08,Ser09]. Cependant, si les équations de Maxwell sont indépendantes de l'unité de longueur, les propriétés des métaux, elles, dépendent fortement de la longueur d'onde. Ainsi, aux fréquences visibles et proche infra-rouge, la réponse magnétique des résonateurs en anneau coupé se dégrade [Zho05,Ish05,Lin06,Pen10]. Cette dégradation peut être comprise comme la combinaison de plusieurs facteurs : les pertes par absorption élevées, la dispersion spectrale de la permittivité des métaux et le fait que la taille des structures métalliques devienne comparable avec la profondeur de peau dans le métal (quelques dizaines de nanomètres).

Ces problèmes théoriques, auxquels s'ajoutent des difficultés technologiques, ont conduit la communauté à proposer de nouvelles conceptions pour pousser les métamatériaux à indice négatif vers le spectre optique. La plupart des nouvelles

géométries visant à atteindre cet objectif ont été imaginées avec les mêmes concepts que ceux qui ont donné naissance aux résonateurs en anneau coupé. Il s'agit de réaliser une structure résonante sub-longueur d'onde dans laquelle une boucle de courant peut être induite par la lumière incidente ; c'est la signature d'une réponse magnétique. La validité de cette image de la boucle de courant peut probablement être remise en question aux fréquences optiques, mais on ne peut pas nier que ce seul concept, mis en avant par le travail de J. Pendry sur les résonateurs en anneau coupé [Pen99], a permis d'imaginer des conceptions innovantes pour des métamatériaux à indice négatif fonctionnant aux hautes fréquences. La structure « fishnet » en fait partie [Zha05,Dol07,Val08] ; elle consiste en un empilement périodique de couches minces métalliques et diélectriques perforé par un réseau de trous. Les métamatériaux de type fishnet peuvent être considérés comme des candidats prometteurs pour la réalisation d'indices de réfraction négatifs aux fréquences optiques, puisque l'existence, sur une large bande spectrale, d'indices négatifs associés à des pertes relativement faibles (en comparaison d'autres structures) a été démontrée de manière reproductible par plusieurs groupes dans le monde, avec des structures comprenant plus d'une couche de méta-atomes [Val08,Cha11,Gar11].

Il est clair que, même si l'image de boucles de courant indépendantes jouant le rôle de dipôles magnétiques a conduit à concevoir la géométrie fishnet, il est nécessaire aujourd'hui d'aller plus loin que ce concept pour développer un modèle quantitatif de la propagation de la lumière à l'intérieur d'un métamatériau de type fishnet. En effet, les méta-atomes qui composent le fishnet sont connectés et leur interaction doit être prise en compte pour comprendre la réponse optique de la structure dans son ensemble. De plus, ces méta-atomes ne sont que légèrement sub-longueur d'onde et le fait de considérer un métamatériau fishnet comme un milieu effectif homogène peut raisonnablement être remis en question.

Dans cette thèse, nous allons au-delà des concepts usuels de méta-atomes et d'homogénéisation avec comme objectif principal d'étendre la compréhension de la propagation de la lumière dans les métamatériaux à indice négatif de type fishnet. Nous essayons de répondre aux questions suivantes qui sont cruciales pour le développement d'indices de réfraction négatifs aux fréquences optiques : (1) Comment la lumière se propage-t-elle à l'intérieur d'un métamatériau fishnet et comment est-elle diffractée à l'interface avec un matériau d'indice positif ? (2) Comment cette propagation et cette diffraction se comparent-elles avec celles d'un milieu homogène et que peut-on apprendre de cette comparaison concernant les méthodes d'homogénéisation ? (3) Quelle est l'origine physique des indices de réfraction négatifs dans les métamatériaux fishnet ? (4) Comment peut-on réaliser une ingénierie précise des propriétés optiques des métamatériaux fishnet ? (5) Même si les structures fishnet ont des pertes plus faibles que d'autres métamatériaux, est-il possible de les réduire en vue

d'applications ?

L'objectif de cette thèse est de répondre à ces questions. En particulier, nous avons développé un modèle semi-analytique pour l'indice effectif des métamatériaux fishnet qui constitue une percée majeure dans la modélisation des métamatériaux optiques. La thèse peut être divisée en quatre parties.

Dans la première partie, nous étudions la diffraction de la lumière à l'interface entre un demi-espace homogène (de l'air par exemple) et un demi-espace comprenant une structure photonique périodique semi-infinie (un métamatériau fishnet par exemple). A l'aide d'une méthode numérique vectorielle, nous calculons les coefficients de diffraction de l'interface et nous démontrons que, dans certains cas, le transport de l'énergie est dû à un seul mode, le mode de Bloch fondamental de la structure périodique. Puis, en s'appuyant sur les coefficients de diffraction de l'interface et sur l'indice effectif de ce mode de Bloch, nous proposons un nouvel algorithme d'extraction des paramètres effectifs du métamatériau [Yan10]. Notre approche met l'accent sur le rôle clé joué par le mode de Bloch fondamental et elle permet d'extraire des paramètres effectifs plus stables que ceux obtenus avec les méthodes classiques basées sur le calcul de la réflexion et la transmission d'une couche de métamatériau d'épaisseur finie.

Dans la deuxième partie, nous étudions la diffraction à l'interface entre deux milieux périodiques. Comme la résolution de ce problème nécessite un calcul numérique très difficile qui ne peut être réalisé qu'avec des outils numériques performants, il est très important de pouvoir bénéficier d'expressions approchées précises. En utilisant l'orthogonalité des modes de Bloch, nous dérivons des expressions analytiques pour les coefficients de diffraction (réflexion et transmission) qui supposent que seul le mode de Bloch fondamental des deux milieux périodiques est connu, les modes d'ordre supérieur étant inconnus. Moyennant l'hypothèse que les périodes des deux milieux ne sont que légèrement différentes, nous montrons que les expressions analytiques permettent d'obtenir des résultats très précis pour différentes géométries allant de guides d'onde périodiques diélectriques à des métamatériaux métalliques [Smi11]. Ces expressions analytiques constituent donc un outil utile pour la conception et l'ingénierie de structures photoniques périodiques.

Comme nous l'avons montré dans la première partie, le mode de Bloch fondamental détermine complètement les propriétés optiques des métamatériaux de type fishnet, en particulier le phénomène de réfraction négative. Dans la troisième partie de la thèse, nous avons développé un modèle semi-analytique de la constante de propagation de ce mode, incluant la partie réel négative et la partie imaginaire [Yan11]. Le modèle est basé sur une analyse détaillée de la propagation de la lumière à l'intérieur du métamatériau qui est

assurée par deux réseaux de guides plasmoniques perpendiculaires formant un canal longitudinal et un canal transverse. L'idée à la base du modèle est de suivre les modes plasmoniques qui se propagent et se diffractent dans la structure. Comme notre approche manipule des processus de diffraction élémentaires à une échelle plus petite que la période, nous qualifions notre modèle de « microscopique ». Le modèle montre que l'origine des valeurs négatives de l'indice de réfraction sur une large bande spectrale peut être essentiellement comprise comme le résultat d'une résonance plasmonique dans les canaux transverses métal-insolant-métal du fishnet. La résonance plasmonique exalte la réponse magnétique du fishnet et les pertes associées à cette résonance peuvent être compensées en incluant du gain dans les couches diélectriques. En outre, le modèle simplifie l'ingénierie des paramètres géométriques des métamatériaux fishnet.

C'est la résonance plasmonique dans des structures de type métal-insolant-métal (MIM) qui induit l'indice de réfraction négatif dans les métamatériaux de type fishnet. Dans la dernière partie de la thèse, nous étudions le comportement asymptotique de nanorésonateurs MIM lorsque leur taille est réduite jusqu'à des dimensions bien en-deçà de la limite de diffraction. En particulier, nous montrons que le facteur de qualité augmente d'un ordre de grandeur quand le volume du résonateur passe de $(\lambda/2n)^3$ à $(\lambda/50)^3$. Une étude complète est réalisée avec un modèle Fabry-Perot semi-analytique. Le modèle reste précis sur toute la gamme de tailles étudiées, même dans le régime quasi-statique où des effets de retard ne sont pas attendus. Ce résultat important et contre-intuitif indique que les résonances plasmoniques localisées dans des nanoparticules peuvent être comprises de la même manière que les résonances délocalisées dans des nanofils métalliques, c'est-à-dire comme des problèmes d'antennes basés sur des effets de retard [Yan12].

Références

- [Cha11] D. Chanda, K. Shigeta, S. Gupta, T. Cain, A. Carlson, A. Mihi, A. Baca, G. Bogart, P. Braun and J. Rogers, "Large-area flexible 3D optical negative index metamaterial formed by nanotransfer printing", *Nature Nano.* **6**, 402-407 (2011).
- [Dol07] G. Dolling, M. Wegener and S. Linden, "Realization of a three-functional-layer negative-index photonic metamaterial", *Opt. Lett.* **32**, 551-553 (2007).
- [Gar11] C. García-Meca, J. Hurtado, J. Martí, A. Martínez, W. Dickson and A. Zayats, "Low-Loss multilayered metamaterial exhibiting a negative index of refraction at visible wavelengths", *Phys. Rev. Lett.* **106**, 067402 (2011).

- [Ish05] A. Ishikawa, T. Tanaka and S. Kawata, "Negative magnetic permeability in the visible light region", *Phys. Rev. Lett.* **95**, 237401 (2005).
- [Jac98] J. Jackson, *Classical Electrodynamics*, 3rd edition (John Wiley & Sons, New York, 1998).
- [Kat05] N. Katsarakis, G. Konstantinidis, A. Kostopoulos, R. Penciu, T. Gundogdu, M. Kafesaki, E. Economou, T. Koschny and C. Soukoulis, "Magnetic response of split-ring resonators in the far-infrared frequency regime", *Opt. Lett.* **30**, 1348 (2005).
- [Kle06] M. Klein, C. Enkrich, M. Wegener, C. Soukoulis and S. Linden, "Single-slit split-ring resonators at optical frequencies: limits of size scaling", *Opt. Lett.* **31**, 1259-1261 (2006).
- [Lan60] L.D. Landau and E.M. Lifshitz, *Electrodynamics of Continuous Media*, (Pergamon, Oxford, 1960).
- [Lin06] S. Linden, C. Enkrich, G. Dolling, M. Klein, J. Zhou, T. Koschny, C. Soukoulis, S. Burger, F. Schmidt and M. Wegener, "Photonic metamaterials: magnetism at optical frequencies", *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* **12**, 1097-1105 (2006).
- [Liu08] N. Liu, H. Guo, L. Fu, S. Kaiser, H. Schweizer and H. Giessen, "Three-dimensional photonic metamaterials at optical frequencies", *Nature Mater.* **7**, 31-37 (2008).
- [Mer09] R. Merlin, "Metamaterials and the Landau-Lifshitz permeability argument: Large permittivity begets high-frequency magnetism", *Proc. Natl. Acad. Sci.* **106**, 1693-1698 (2009).
- [Pen99] J. Pendry, A. Holden, D. Robbins and W. Stewart, "Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena", *IEEE Transactions on Microwave Theory and Tech.* **47**, 2075 (1999).
- [Pen00] J. Pendry, "Negative refraction makes a perfect lens", *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3966-3969 (2000).
- [Pen10] R. S. Penciu, M. Kafesaki, Th. Koschny, E. Economou and C. Soukoulis, "Magnetic response of nanoscale left-handed metamaterials", *Phys. Rev. B* **81**, 235111 (2010).
- [Ser09] I. Sersic, M. Frimmer, E. Verhagen and A. Koenderink, "Electric and magnetic dipole coupling in near-infrared split-ring metamaterial arrays", *Phys. Rev. Lett.* **103**, 213902 (2009).
- [She01] R. Shelby, D. Smith and S. Schultz, "Experimental verification of a negative index of refraction", *Science* **292**, 77 (2001).
- [Smi11] W. Śmigaj, P. Lalanne, J. Yang, T. Paul, C. Rockstuhl and F. Lederer, "Closed-form expression for the scattering coefficients at an interface between two periodic media", *Appl. Phys. Lett.* **98**, 111107(2011).
- [Val08] J. Valentine, S. Zhang, T. Zentgraf, E. Ulin-Avila, D. Genov, G. Bartal and X. Zhang, "Three-dimensional optical metamaterial with a negative refractive index", *Nature (London)* **455**, 376 (2008).
- [Yan10] J. Yang, C. Sauvan, T. Paul, C. Rockstuhl, F. Lederer and P. Lalanne, "Retrieving the effective parameters of metamaterials from the single

interface scattering problem", *Appl. Phys. Lett.* **97**, 061102 (2010).

- [Yan11] J. Yang, C. Sauvan, H.T. Liu and P. Lalanne, "Theory of fishnet negative-index optical metamaterials", *Phys. Rev. Lett.* **107**, 043903 (2011).
- [Yan12] J. Yang, C. Sauvan, A. Jouanin, S. Collin, J.-L. Pelouard and P. Lalanne, "Ultrasmall metal-insulator-metal nanoresonators: impact of slow-wave effects on the quality factor", *Opt. Express* **20**, 16880-16891 (2012).
- [Zha05] S. Zhang, W. Fan, N.C. Panoiu, K.J. Malloy, R.M. Osgood and S.R.J. Brueck, "Experimental demonstration of near-infrared negative-index metamaterials", *Phys. Rev. Lett.* **95**, 137404 (2005).
- [Zho05] J. Zhou, T. Koschny, M. Kafesaki, E.N. Economou, J.B. Pendry and C.M. Soukoulis, "Saturation of the magnetic response of split-ring resonators at optical frequencies", *Phys. Rev. Lett.* **95**, 223902 (2005).