THÈSE

PRÉSENTÉE A

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX 1

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

Par Sylvain LANNEBÈRE

POUR OBTENIR LE GRADE DE
DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : Électronique

Étude théorique de métamatériaux formés de particules diélectriques résonantes dans la gamme submillimétrique : magnétisme artificiel et indice de réfraction négatif

---

Date de soutenance : 30 Novembre 2011

Après avis de :

M. Eric Akmansoy	Maître de conférences, Université Paris 11	Rapporteur
M. David Cassagne	Professeur, Université Montpellier 2	Rapporteur

Devant la commission d'examen formée de :

M. Eric Akmansoy	Maître de conférences, Université Paris 11	Rapporteur
M. Ashod Aradian	Chargé de recherche, CNRS	Directeur de thèse
M. David Cassagne	Professeur, Université Montpellier 2	Rapporteur
M. Filippo Capolino	Professeur, Université de Californie (Irvine)	Examinateur
M. Bernard Pouligny	Directeur de recherche, CNRS	Examinateur
Mme. Valérie Vigneras	Professeur, Université Bordeaux 1	Directeur de thèse

Table des matières

Introduction générale **11**

I Introduction **13**

I.1 Contexte et motivation de la thèse 16

I.1.1 Métamatériaux : les travaux fondateurs 16

I.1.1-a Les travaux de Veselago 16

I.1.1-b Confirmation expérimentale 16

I.1.1-c Possibilité d'imagerie parfaite 17

I.1.2 Développement du domaine 18

I.1.2-a Miniaturisation d'antennes et de circuits 18

I.1.2-b Super résolution 18

I.1.2-c Camouflage électromagnétique (*cloaking*) 18

I.1.3 Vers les métamatériaux à indice négatif, 3D et isotropes 19

I.1.3-a Métamatériau à indice négatif 19

I.1.3-b Métamatériaux 3D et isotropes à base de particules diélectriques . . . 21

I.2 Propriétés électromagnétiques des matériaux et métamatériaux 24

I.2.1 Propagation de la lumière dans le vide 24

I.2.1-a Les équations de Maxwell dans le vide et l'équation d'onde 24

I.2.1-b Les ondes planes monochromatiques 24

I.2.1-c Relation de dispersion dans le vide 25

I.2.2 Propagation de la lumière dans un milieu 26

I.2.2-a Les équations de Maxwell dans les milieux et l'équation d'onde 26

I.2.2-b Relation de dispersion dans les milieux 28

I.2.2-c Indice optique d'un milieu 28

I.2.2-d Impédance d'un milieu 30

I.2.3 Théorème de Poynting et flux d'énergie 30

I.2.3-a Théorème général 30

I.2.3-b Théorème pour des champs harmoniques en notation complexe 31

I.2.4 Vitesses de phase et de groupe 31

I.2.4-a Vitesse de phase 31

I.2.4-b Vitesse de groupe 31

I.2.5 Comportement électromagnétique des différents types de matériaux 33

I.2.5-a Propriétés des matériaux magnétiques 33

I.2.5-b Diélectriques et métaux 33

I.3 Conclusions 36

II Outils analytiques et numériques **37**
II.1 Théorie de Mie : diffusion de la lumière par une particule sphérique 37
II.1.1 Les harmoniques sphériques vectorielles 37
II.1.2 Le développement de Mie 40
II.1.3 Coefficients dipolaires de Mie 42
II.1.3-a Pour des particules petites devant la longueur d'onde 42
II.1.3-b Résonances dipolaires et quadrupolaires 43
II.2 Du microscopique au macroscopique : homogénéisation 44
II.2.1 Ordres de grandeur dans un cristal solide 44
II.2.2 Champs dipolaires et polarisabilité 45
II.2.3 Théorie de Clausius-Mossotti 47
II.2.4 Théorie du milieu effectif : Maxwell Garnett 49
II.2.4-a Principe de base 49
II.2.4-b Modèle de Maxwell Garnett classique 50
II.2.4-c Théorie de Maxwell Garnett étendue 51
II.2.4-d Discussion sur les limites de validité de la théorie de Maxwell Garnett 53
II.2.4-e Formulation alternative de Lewin 54
II.3 Simulation numérique de métamatériaux par la méthode des éléments finis 57
II.3.1 La méthode des éléments finis 57
II.3.1-a Caractéristiques principales et comparaison avec les autres méthodes . 57
II.3.1-b Principe de la méthode 58
II.3.2 Le logiciel HFSS® 60
II.3.3 Extraction des paramètres effectifs 61
II.3.3-a Extraction par la méthode de Nicolson-Ross-Weir 62
II.3.3-b Méthode d'extraction de Scher et Kuester 64
II.4 Conclusions 67

III Magnétisme artificiel dans la gamme térahertz **69**
III.1 Résonance magnétique de matériaux diélectriques dans le domaine térahertz 69
III.1.1 Conditions d'apparition des résonances dipolaires de Mie 70
III.1.2 Résonances de Mie magnétique dipolaire et condition du milieu effectif 72
III.1.3 Matériau de haute permittivité dans la gamme térahertz 74
III.1.3-a Titanate de Baryum Strontium ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$, BST) 74
III.1.3-b L'oxyde de Magnésium (MgO) 76
III.1.3-c Titanate de Magnésium ($MgTiO_3$) 77
III.1.3-d Tantalate de Lithium ($LiTaO_3$) 78
III.1.3-e Dioxyde de Titane (TiO_2) 79
III.1.3-f Conclusion générale 81
III.2 Prédictions analytiques pour l'obtention de matériaux magnétiques 82
III.2.1 Prédictions analytiques pour $MgTiO_3$ 82
III.2.1-a Calcul de la perméabilité effective 82
III.2.1-b Abaque pour la synthèse chimique 83
III.2.2 Prédictions analytiques pour $LiTaO_3$ 84
III.2.2-a Calcul de la perméabilité effective 84
III.2.2-b Abaque pour la synthèse chimique 85

III.2.3 Prédictions analytiques pour TiO_2 . . . 86
III.2.3-a Calcul de la perméabilité effective . . . 86
III.2.3-b Abaque pour la synthèse chimique . . . 88
III.2.4 Effet de la permittivité du milieu-hôte . . . 89
III.2.5 Conclusions . . . 90
III.3 Simulations numériques par éléments finis . . . 91
III.3.1 Arrangement cubique . . . 91
III.3.1-a Influence de l'épaisseur du matériau (nombre de couches de sphères) . 91
III.3.1-b Comparaison avec les prédictions analytiques pour un réseau cubique . 92
III.3.1-c Influence de la fraction volumique . . . 94
III.3.2 Effet de l'arrangement des particules . . . 95
III.3.2-a Réseau orthorhombique . . . 97
III.3.2-b Réseau tétragonal . . . 98
III.3.2-c Explication du sens de déplacement des résonances . . . 101
III.3.3 Effet de la suppression de la correction radiative liée à la périodicité du réseau . . 102
III.4 Analyse modale dans l'approximation du dipôle unique . . . 105
III.4.1 Modélisation par la SDA et structures étudiées . . . 105
III.4.2 Résultats de la SDA et comparaison avec la théorie de Maxwell Garnett . . . 107
III.4.3 Comparaison des résultats entre la SDA et les résultats des éléments finis . . . 111
III.4.4 Conclusions sur la SDA . . . 112
III.5 Conclusions . . . 114

IV Etude de la polydispersité 115
IV.1 Maxwell Garnett polydisperse . . . 116
IV.1.1 Clausius-Mossotti pour plusieurs tailles de particules . . . 116
IV.1.1-a Cas discret . . . 116
IV.1.1-b Cas continu . . . 117
IV.1.2 Maxwell Garnett étendu pour plusieurs tailles de particules . . . 117
IV.1.2-a Cas discret . . . 117
IV.1.2-b Cas continu . . . 118
IV.2 Propriétés magnétiques d'un système avec deux tailles de sphères distinctes . . . 118
IV.2.1 Critère pour élargir la zone négative . . . 119
IV.2.2 Application à un exemple concret . . . 120
IV.2.3 Procédure d'optimisation de la largeur de la bande négative . . . 121
IV.3 Configuration optimale pour plusieurs tailles de particules . . . 123
IV.3.1 Distribution discrète . . . 123
IV.3.2 Distribution continue . . . 124
IV.3.2-a Distribution en créneau . . . 124
IV.3.2-b Distribution gaussienne . . . 126
IV.4 Conclusions . . . 128

V Assemblages denses de sphères bidisperses 129
V.1 Principe et travaux antérieurs . . . 129
V.2 Prédictions analytiques . . . 131
V.2.1 Permittivité effective négative avec des sphères de TiO_2 . . . 131

V.2.1-a Position de la résonance dipolaire électrique de Mie 131
V.2.1-b Permittivité effective selon le modèle de Maxwell Garnett étendu . . . 132
V.2.2 Rapport des tailles des sphères et arrangement géométrique 133
V.2.2-a Rapport entre les tailles des deux types de sphères 133
V.2.2-b Arrangement géométrique des sphères 134
V.2.3 Structures étudiées 135
V.2.4 Prédictions analytiques sur les assemblages bidisperses de sphères 136
V.3 Simulations numériques et extraction des paramètres effectifs 140
V.3.1 Structure simulée 140
V.3.2 Analyse et interprétation du spectre de transmission 140
V.3.2-a Analyse de la contribution des grandes sphères seules 143
V.3.2-b Analyse de la contribution des petites sphères seules 144
V.3.2-c Analyse du spectre complet 144
V.3.3 Extraction des paramètres effectifs et comparaisons aux prédictions analytiques . 145
V.3.3-a Inspection qualitative du champ 150
V.4 Analyse des modes de Bloch dans la structure 153
V.4.1 Méthodologie de détermination des modes de Bloch 153
V.4.1-a Application du théorème de Bloch et ajustements 153
V.4.1-b Choix du point d'échantillonnage z_0 154
V.4.2 Détermination des modes de Bloch sur l'ensemble du spectre 156
V.4.2-a Modes de Bloch à basse fréquence 156
V.4.2-b Bande passante entre 235 et 290 GHz 157
V.4.2-c Bande passante entre 310 et 320 GHz 161
V.4.3 Indice obtenu par ajustement des modes de Bloch 162
V.5 Discussion et conclusions 164

Conclusion Générale **167**

Annexe I : Théorème de Poynting **171**

Annexe II : Erreur d'extraction **175**

Symboles et abbréviations

c : célérité de la lumière dans le vide. $c = 299792458\,\mathrm{m/s}$
$\lambda_0 = cT = \frac{c}{\nu}$: longueur d'onde dans le vide
ν : fréquence d'étude
$T = 1/\nu$: période de l'onde électromagnétique
σ : conductivité électrique
ε_0 : permittivité du vide. $\varepsilon_0 = 8.8541878176 \cdot 10^{-12}\,\mathrm{F/m}$
μ_0 : perméabilité du vide $\mu_0 = 1.2566370614 \cdot 10^{-6}\,\mathrm{H/m}$
ε : permittivité
μ : perméabilité
ε_r : permittivité relative
μ_r : perméabilité relative
$\mathbf{E}$: champ électrique
$\mathbf{B}$: champ magnétique
$\mathbf{D}$: déplacement électrique
$\mathbf{H}$: excitation magnétique
ρ : densité volumique de charge
$\mathbf{J}$: densité volumique de courant
MTM : Métamatériau
MG : Maxwell Garnett
NRW : Nicolson-Ross-Weir
SRR : Split-Ring-Resonator

Remerciements

Ce manuscrit de thèse est l'aboutissement d'un travail de 3 années, passées la plupart du temps au CRPP. Je tiens ici à remercier l'ensemble des personnes qui ont contribué plus ou moins directement à l'élaboration de ce travail de thèse.
Tout d'abord, le directeur du CRPP Philippe Richetti et celui de l'IMS Pascal Fouillat pour m'avoir accueilli au sein de leurs laboratoires. Je remercie également mes directeurs de thèses Ashod Aradian et Valérie Vigneras pour la qualité de leur encadrement pendant ces trois années, ainsi que les membres du jury Eric Akmmansoy, David Cassagne, Filippo Capolino et Bernard Pouligny pour avoir accepté d'examiner et de juger ce travail.

J'adresse aussi de sincères remerciements à Philippe Barois, Virginie Ponsinet, Frédéric Nallet et autres membres de l'équipe CAAM du CRPP pour leur aide précieuse au cours des réunions de travail et également à mes collègues du projet GIS : Patrick Mounaix, Mario Maglione, Stéphane Mornet, Laurent Oyhenart qui m'a gentiment fait partager son expertise du logiciel HFSS et Sophie Fasquel. Du côté non permanent, je tiens à souligner il me fut particulièrement agréable de travailler en collaboration avec Riad Yahiaoui et U-chan Chung.

A titre plus personnel, je souhaite également remercier l'ensemble des personnes et amis qui ont fait mon quotidien pendant ces trois années de thèse au travers des différents événements rythmant la vie d'un thésard.
Je remercie une nouvelle fois Ashod qui, en plus d'être un directeur de thèse de qualité, au déhanché redoutable (je fais bien sur allusion ici à la salsa qu'il danse avec brio), a su se montrer un camarade de "métabière" des plus respectables malgré son fort accent parisien. Merci à mes camarades de bureau que j'ai pu découvrir et apprécier pendant ces trois années. Alessandro Veltri, Jedi linuxien, véritable padawan capillaire du grand Qui-Gon Jinn, qui m'a énormément appris et avec qui j'ai également eu l'honneur d'effectuer plusieurs voyages à travers le monde. La "super-maquina" Jose Maria Rico Garcia, un camarade de bureau extrêmement poli, cordial et enthousiaste (c'est peu dire). J'ai pu au cours d'un séjour au coeur de la Laponie Finlandaise apprécier ses capacités d'adaptation face à un dénuement quasi total. Le docteur Célia Mercader qui fut ma première camarade de bureau, brillante et fort sympathique. Enfin Sandra, que j'ai pu côtoyer pendant ma dernière année de thèse et qui a très vite fait honneur à son pays de part son enthousiasme et sa sympathie (chucuruc).

Un grand merci aux autres membres non permanents de l'équipe métamatériaux : Ludivine, Clémence, Vitaliy, Olivier, et Julien qui se sont révélés être des camarades d'équipe forts sympathiques.

J'adresse également des remerciements aux membres de la "dream team" le docteur Antonin Prévoteau (Soupy) son compagnon Daniel Rodriguez (Porty), le non docteur Nessim Arazam (Rascar capac) pour les soirées et les dézingues diverses, le docteur Olivier Thiebaut (Surfy) pour les sessions surf-sifflets avec départ matinal (et parfois retour impromptu), le gentleman Emmanuel Suraniti toujours la pour prêter une oreille aux âneries de tout un chacun, ainsi que Thomas Brunet sage maître de conférence toujours prêt à aborder les sujets les plus délicats.
Pendant ces trois années j'ai également passé beaucoup de temps au entraînement de karaté ayant lieu pendant la pause déjeuner et je remercie tout particulièrement le sensei M'bolo qui nous transmet bénévolement sa passion dans la bonne humeur ainsi que tout les gens du karaté Eric, Jean christophe, Seb, Will, Nico, Axel, Corinne, Béa, Brigitte.

Pour finir, je veux remercier tout les gens avec qui j'ai pu tisser des liens, un grand merci à l'Andouillette, la Wurste, les copains de repas, de métabières, et de pauses thé : Mama Victoria (j'espère avoir les photos un jour), Damien Bazin et Habouzit, Shannon, Simon, Dalice, Emilie, Stéphanie, Andie, Hélène,

Kelby, Tati, Fabienne, Karel, Jeanne Marie, Le Cheval, Prathap, Nadine toujours prête pour aborder les sujets les plus brûlant, et aussi Philippe Barbot' pour son humeur toujours joviale.

Enfin je veux finalement remercier tout les membres de ma famille pour leur soutien et bien entendu, Amina qui m'a elle aussi supporté avec gentillesse pendant plus trois années de thèse.

Introduction générale

Les métamatériaux électromagnétiques sont des matériaux composites artificiels dont la structure interne, d'échelle typique bien en-dessous de la longueur d'onde incidente, interagit avec les ondes de sorte à engendrer des réponses inhabituelles, extrêmes, voire inconnues dans les matériaux naturels (magnétisme artificiel, valeurs extrêmes de la permittivité électrique, indice nul,etc.). Les années récentes ont vu un engouement particulièrement fort pour le domaine des métamatériaux, à la fois pour les nouvelles questions fondamentales qui ont été soulevées, mais également dans la perspective de mettre au point des applications potentiellement révolutionnaires (super-résolution, camouflages électromagnétique, technologie des antennes,etc).

Nombre de schémas de métamatériaux comprennent une collection d'éléments résonants de taille très inférieure à la longueur d'onde ; les propriétés intéressantes émergent alors au voisinage de ces résonances. Afin de contrôler les résonances dans le matériau, les résonateurs doivent être fabriqués avec un certain degré de précision et organisés dans la structure. Les méthodes de fabrication peuvent être soit « descendantes » (top-down), soit « ascendantes » (bottom-up). La fabrication de métamatériaux tridimensionnels, en particulier, est difficile avec les méthodes descendantes. Dans le cadre de projets de recherche en cours à Bordeaux (projet SAMM du GIS - *Advanced Materials in Aquitaine*) et avec des partenaires européens, notre travail de thèse s'est focalisé sur l'étude théorique de structures qui puissent être fabriquées par la voie, montante de la chimie et de l'auto-assemblage.

Plus précisément, nous nous sommes intéressés aux métamatériaux formés par assemblage de particules diélectriques résonantes opérant à des fréquences de travail dans la gamme térahertz, gamme pour laquelle existe un intérêt fort en termes de dispositifs de contrôle des ondes. La problématique principale de nos travaux a été de comprendre s'il était possible de transposer avec succès des schémas proposés précédemment dans la littérature pour la gamme gigahertz ; en raison des fortes modifications des propriétés des matériaux en allant vers le térahertz, en particulier la diminution de leur permittivité, cette transposition ne se limite pas à un simple changement d'échelle des résonateurs – il est nécessaire de revisiter et ré-étudier les structures proposées.

Dans le premier chapitre de mémoire, nous introduisons le domaine des métamatériaux électromagnétiques et quelques-unes de leurs applications ; puis nous ferons des rappels d'électromagnétisme en soulignant les points qui peuvent devenir délicats dans le cas des métamatériaux, notamment ceux à indice négatif.

Le deuxième chapitre est consacré à la présentation des différentes outils théoriques et analytiques utilisées pour la modélisation des milieux composites : théorie de Mie de diffusion de la lumière par une sphère, théorie du milieu effectif de Maxwell Garnett, et simulation numérique par éléments finis, méthode numérique que nous avons largement utilisée au cours de notre doctorat.

Dans le troisième chapitre, nous présentons nos travaux sur des assemblages de sphères diélectriques résonantes, et la possibilité d'obtenir des effets de magnétisme artificiel dans le térahertz. Nous com-

mencerons par lister les matériaux constitutifs des particules résonantes remplissant les conditions suffisantes pour engendrer du magnétisme artificiel. Nous étudierons les propriétés de ces assemblages à travers la théorie de Maxwell Garnett, afin de présenter un « cahier des charges » (concentration, taille) aux chimistes intéressés par la réalisation de telles structures. Nous procédons ensuite à des simulations numériques permettant de vérifier les résultats analytiques, enfin, nous comparerons nos résultats avec une analyse modale des structures établie dans le cadre de l'approximation du dipôle unique.

Dans le quatrième chapitre, nous étudions à travers un modèle de Maxwell-Garnett généralisé l'influence de la polydispersité en taille des particules sur les propriétés décrites dans le chapitre précédent, en cherchant à évaluer quelle peut être la marge de tolérance dans la qualité de la fabrication des résonateurs, afin par exemple de garder les effets de perméabilité magnétique. Nous chercherons également à comprendre dans quels cas la polydispersité est néfaste et dans quels cas elle pourrait être éventuellement tournée à notre avantage.

Enfin, la dernière partie de notre travail est consacrée à l'étude de métamatériaux à indice négatif, dans la gamme térahertz, obtenus en tant qu'assemblages denses et bidisperses de sphères (deux tailles). Nous calculons les propriétés attendues selon le modèle de Maxwell Garnett, puis les confronterons avec les résultats issus des simulations numériques. Nous procédons finalement à une analyse fine en termes de modes Bloch de la structure périodique et en extrayons les valeurs de l'indice correspondantes.

Chapitre I

Introduction

Que sont les métamatériaux ? Du point de vue sémantique, le préfixe "méta" signifie "au-delà de" en grec ; le terme métamatériau désigne donc une classe de matériau dont les propriétés vont d'une certaine manière au-delà de celles des matériaux classiques. Plus précisément, on entend par cela des milieux dont la structure interne interagit avec une onde incidente (acoustique ou électromagnétique) de sorte à créer des propriétés macroscopiques dites "effectives" inhabituelles, voire inobservées dans les matériaux naturels. Dans le cas des métamatériaux électromagnétiques, qui nous a occupé dans le cadre de nos travaux de thèse, les paramètres électromagnétiques fondamentaux décrivant l'interaction onde-matière sont la permittivité électrique et la perméabilité magnétique ; les métamatériaux permettent par exemple d'atteindre, selon les structures proposées et les gammes de fréquence visées, des valeurs "extrêmes" de la permittivité, soit inhabituellement grandes, soit au contraire proches de zéro. De même, certaines structures permettent d'obtenir des valeurs non-triviales de la perméabilité effective dans les gammes fréquentielles où elle est est naturellement égale à l'unité, donnant naissance à un magnétisme artificiel.

Si on peut retracer dans l'histoire scientifique du XX^{e} siècle plusieurs occurrences de métamatériaux "précurseurs" dans différentes branches de l'électromagnétisme et de la radio-ingénierie [1], l'essor réel de ces derniers en tant que domaine à part entière, avec une dynamique d'ensemble et construite sur des concepts communs date du début des années 2000. Environ dix ans plus tard, on peut dénombrer une réelle communauté des métamatériaux, comptant parmi ses rangs aussi bien physiciens, chimistes qu'ingénieurs en télécommunications.

Dans ce chapitre introductif, nous dressons un rapide état de l'art des travaux sur les métamatériaux, notamment les métamatériaux formés de particules diélectriques. Nous rappellerons les événements scientifiques qui ont conduit à la naissance de cette branche de l'électromagnétisme et établirons une liste succincte d'applications potentielles. Puis nous rappellerons quelques notions classiques sur l'électromagnétisme et la lumière, ainsi que sur l'électromagnétisme dans les milieux [2, 3], qui seront utiles pour la lecture de ce mémoire.

D'un point de vue historique, les premières idées sur la nature de la lumière ont été développées dans l'antiquité par les philosophes et mathématiciens grecs qui établirent à cette époque les lois de la réflexion. Il fallut ensuite attendre le début du XVII^{e} siècle pour que de nouvelles avancées fassent leur apparition. Snell (1580-1626) énonça en 1621 les lois de la réfraction, mais sans les publier, et elles ne furent diffusées que grâce à Descartes (1596-1650).

Peu après, les premiers effets d'interférences observés et connus aujourd'hui sous le nom d'anneaux de Newton furent découverts de manière indépendante par Boyle (1627-1691) et Hooke (1635-1703). Ce

dernier fut également le premier à considérer la lumière comme une vibration se propageant à vitesse infinie ou extrêmement grande. Il fallut attendre 1675 pour que Römer (1644-1710) prouve, en observant les éclipses des satellites de Jupiter, que la vitesse de propagation de la lumière était en fait finie. La théorie ondulatoire de Hooke fut grandement améliorée par Huygens (1629-1695) qui put ainsi retrouver les lois de la réflexion et de la réfraction. Cependant, à la même époque, Newton (1642-1727) découvrit que la lumière blanche pouvait être décomposée en plusieurs couleurs par un prisme et refusa la théorie ondulatoire de la lumière au profit d'une théorie corpusculaire. La théorie ondulatoire de Hooke et Huygens fut ainsi ignorée pendant près d'un siècle en raison de la grande autorité scientifique dont jouissait Newton à cette époque.
La théorie ondulatoire de la lumière revint au premier plan lorsque Young (1773-1829) découvrit et étudia, en 1801, les phénomènes d'interférences de la lumière à travers des fentes, et surtout, grâce à Fresnel (1788-1827), qui, synthétisant les travaux de Huygens et de Young, put expliquer aussi bien la propagation rectiligne de la lumière que les phénomènes de diffraction. Fresnel déduit aussi les lois des coefficients de réflexion et transmission à l'interface entre deux milieux.
Cependant, l'avancée la plus importante en ce qui concerne notre compréhension de la lumière fut l'œuvre de James Clerk Maxwell (1831-1879). En faisant la synthèse des travaux en électricité et en magnétisme, notamment ceux de Faraday (1791-1867), il comprit que la lumière, l'électricité et le magnétisme étaient des phénomènes liés et que la vitesse de propagation de la lumière pouvait être calculée à partir de considération électriques et magnétiques. Il établit ainsi (ce qui fut confirmé expérimentalement par Hertz (1857-1894)) que la lumière visible est en réalité un rayonnement électromagnétique (un champ électrique et magnétique oscillant de pair) qui n'occupe qu'une faible part du spectre électromagnétique.
Cette onde électromagnétique est caractérisée par sa fréquence de vibration ν, ou encore sa période temporelle $T = 1/\nu$. Dans le vide, la longueur d'onde de la vibration λ_0 est reliée à sa fréquence par la vitesse de la lumière c.

$$\lambda_0 = cT = \frac{c}{\nu}$$

Suivant la fréquence, les ondes électromagnétiques prennent différentes appellations comme on peut le voir sur la FIGURE I.1. La lumière visible ne correspond qu'à une toute petite partie du spectre électromagnétique avec des longueurs d'onde comprises entre 400 et 745 nm.

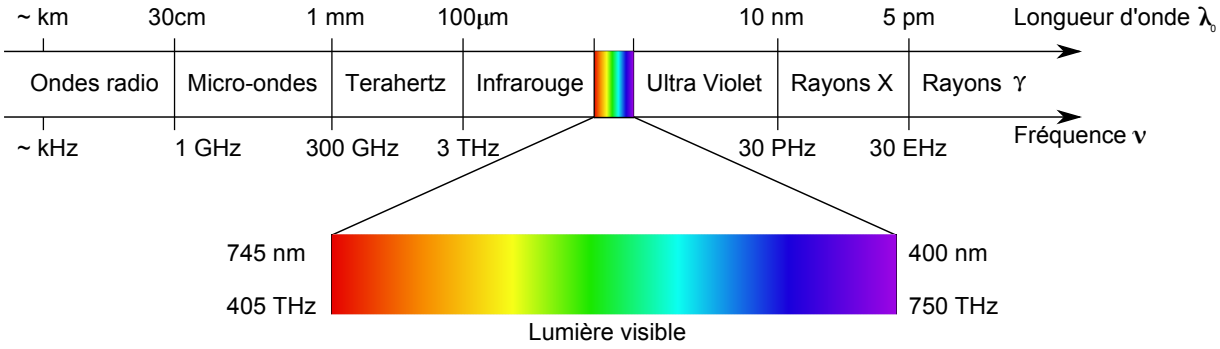

FIGURE I.1 – Spectre électomagnétique

Les équations de Maxwell furent une révolution et permirent le développement de nombreuses applications encore inimaginables il y a plus d'un siècle. Ces équations sont toujours utilisées de manière intensive aussi bien dans l'industrie qu'au niveau fondamental.

C'est en considérant certaines solutions inexplorées de ces équations que les métamatériaux sont nés. Nous reviendrons, dans la suite, plus en détails sur leur naissance, et nous nous intéressons maintenant à la définition précise, la plus générale, que l'on puisse trouver sur les métamatériaux.
Comme nous l'avons déjà mentionné plus haut, et comme nous le reverrons en détail dans la seconde partie de ce chapitre, les propriétés électromagnétiques des matériaux naturels "simples" sont représentées par deux grandeurs de première importance, intervenant dans les équations de Maxwell : la permittivité électrique ε et la perméabilité magnétique μ. Ces grandeurs, qui en général dépendent de la fréquence ν, décrivent la réponse du matériau à une excitation électrique et magnétique, respectivement.

On peut alors chercher à représenter l'ensemble des matériaux dans un plan contenant toutes les valeurs (réelles) possibles de μ et ε (voir la FIGURE I.2). Pour des fréquences ν supérieures à quelques dizaines de gigahertz, les matériaux naturels ont une perméabilité μ très proche de 1, se rangeant sur autour de la ligne $\mu = 1$. On appelle *diélectriques* ceux de ces matériaux qui possèdent une permittivité ε positive et *métaux* ceux qui ont une permittivité négative (en-dessous d'une certaine fréquence plasma). En examinant cette figure, il apparaît clairement que les matériaux naturels ne représentent qu'une petite partie des valeurs possibles de ε et μ. Les métamatériaux ont ainsi pour ambition, du moins dans le principe, d'explorer les propriétés des matériaux occupant le reste du plan (ε, μ).

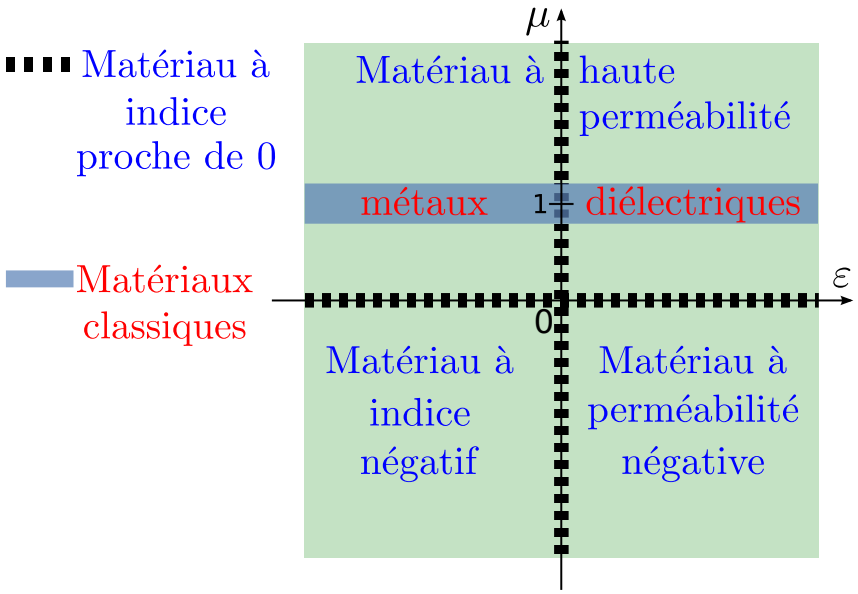

FIGURE I.2 – Représentation schématique des matériaux classiques et des métamatériaux pour des fréquences ν allant au delà de quelques dizaines de gigahertz dans le plan (ε, μ). Les matériaux classiques (métaux et diélectriques) ont une perméabilité proche de 1 pour ces fréquences. Le reste des possibilités correspond potentiellement aux métamatériaux.

De manière générale, ces propriétés sont atteintes en utilisant des résonateurs de tailles typiques d très inférieures à la longueur d'onde de fonctionnement ($d \leq \lambda_0/10$).
Nous avons aussi mentionné sur la FIGURE I.2, les types de métamatériaux les plus importants : les métamatériaux à haute perméabilité, perméabilité négative, et enfin à indice négatif et proche de zéro.

I.1 Contexte et motivation de la thèse

I.1.1 Métamatériaux : les travaux fondateurs

Nous retraçons ici, dans ses grandes lignes, l'histoire de la naissance et du développement du domaine des métamatériaux ; cette présentation suit celle de [1].

I.1.1-a Les travaux de Veselago

Tout commença en 1964 quand V. Veselago se demanda, d'un point vue conceptuel, quelles propriétés auraient un matériau dont la permittivité et la perméabilité seraient négatives dans la même gamme de fréquence [4]. En appliquant les équations de Maxwell pour une onde électromagnétique plane dans un tel milieu, Veselago remarque que le trièdre formé par le vecteur d'onde, le champ électrique et le champs magnétique est indirect, tandis que dans le cas classique, ce même trièdre est connu pour être direct. Par ailleurs, Veselago observe que, dans le même temps, le trièdre formé par le vecteur de Poynting, le champ électrique et le champ magnétique reste en revanche direct, ce qui signifie que pour ces milieux, le vecteur d'onde et le vecteur de Poynting pointent dans des directions opposées – situation inédite a priori. L'orientation du vecteur d'onde donnant le sens de propagation de la phase et l'orientation du vecteur de Poynting celui de la propagation de l'énergie (cf. I.2), Veselago conclut que dans ce type de matériau la phase et l'énergie se propagent dans des directions opposées.
À partir des lois de la réfraction de Snell et des relations de passages entre deux milieux, il montre également que l'indice d'un tel milieu est négatif, dans le sens où, lors du passage d'un milieu d'indice positif à négatif (ou inversement), tout rayon est réfracté du même coté de la normale au plan d'incidence (dans un dioptre classique, le rayon "traverse" la normale à la réfraction).

Cependant, comme le souligne Veselago dans la partie finale de sa publication théorique, l'absence de matériaux à perméabilité négative rendait, à cette époque, impossible la démonstration expérimentale de ses résultats et le sujet resta lettre morte pour de longues années.

I.1.1-b Confirmation expérimentale

Pour que le sujet se lance réellement, il fallut attendre la fin des années 1990, avec J. Pendry et son équipe qui réalisent des travaux sur les réseaux de fils métalliques ("wire medium" en anglais) [5, 6] et sur les résonateurs en forme d'anneaux coupés (*split-ring resonators* ou SRR) [7]. Ces deux types de milieux sont constitués de résonateurs dont les tailles caractéristiques sont très inférieures à la longueur d'onde incidente, et permettent respectivement d'obtenir une permittivité et une perméabilité négative, dans la gamme micro-onde.
Dès lors, tous les outils sont réunis pour la vérification expérimentale des travaux de Veselago, et ce fut le groupe de D. Smith qui fabriqua en 2001 le premier matériau à perméabilité et permittivité négative simultanées dans la gamme micro-onde (voir FIGURE I.3). Ces chercheurs montrèrent que pour un matériau dont *un seul* des paramètres est négatif, les ondes ne peuvent se propager (comme attendu) mais que la propagation est bien restaurée dans un milieu où les *deux* paramètres sont négatifs (comme l'avait prédit Veselago)[9]. Dans une seconde publication [8], ils confirmèrent ensuite grâce à un montage mettant en jeu un métamatériau taillé en forme de prisme, que l'on a bien un indice de réfraction négatif avec ce type de matériau.

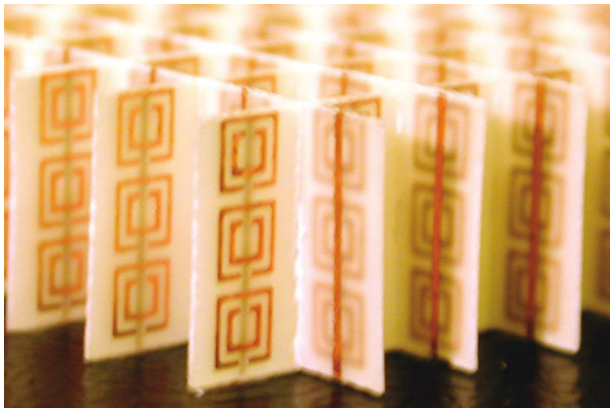

FIGURE I.3 – Le premier métamatériau (bidimensionnel) à indice négatif dans la gamme micro-onde. Il est constitué de SRRs et de fils en cuivre déposés sur un substrat de fibre de verre. La cellule unitaire a une taille de 5 mm et le métamatériau est conçu pour fonctionner dans une gamme de longueurs d'onde autour de 3 cm [8].

I.1.1-c Possibilité d'imagerie parfaite

L'existence, dès lors prouvée, de matériaux à indice négatif était certes chose sensationnelle, mais sans applications potentielles. On peut supposer que le sujet aurait sans doute été condamné à un oubli progressif sans la publication de J. Pendry intitulée « negative refraction make a perfect lens » parue en 2000 [10]. Pendry poussa un peu plus loin les travaux de Veselago, en examinant la cette fois la transmission et la réflexion d'une lame à face parallèle d'indice $n = -1$. Il montra que ce type de structure focalise non seulement le champ lointain (comme une lentille classique), mais aussi la partie évanescente du champ (c.f. FIGURE I.4). Une lentille de cette sorte, que Pendry nomme « super-lentille », offre donc des possibilités d'imagerie parfaite, permettant potentiellement de franchir la limite de diffraction des lentilles usuelles.

Notons, cependant, que la limite de diffraction n'était déjà plus une limite infranchissable puisque les

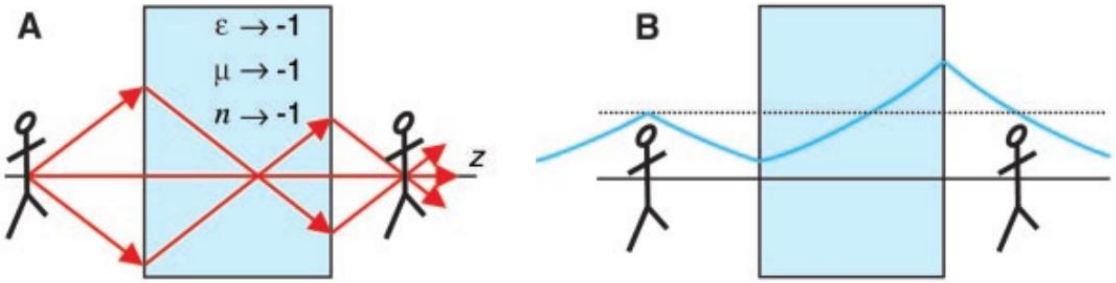

FIGURE I.4 – Schéma issu de [11], illustrant le principe d'une superlentille . Le champ lointain (**A**) ainsi que le champ évanescent (**B**) issues de l'objet sont focalisés au même point image, donnant ainsi, dans le principe, une image de résolution idéale.

techniques d'imagerie du champ proche (SNOM) existaient déjà. Cependant, la découverte de Pendry permettait d'imaginer faire une image, de manière quasi instantanée et dans sa totalité, d'un échantillon, sans avoir besoin de le scanner point par point (processus pouvant demander un certain temps) comme on le faisait avec un SNOM. De ce fait, cette brillante idée, qui fit grand bruit et suscita de vifs débats, agit vraiment comme point de départ de la branche des métamatériaux.

I.1.2 Développement du domaine

À partir de la découverte de Pendry, de nombreuses équipes de recherches s'intéressèrent à la physique des milieux électromagnétiques complexes et à ses applications pour l'imagerie et les télécommunications. Le champ des métamatériaux s'élargit alors grandement, de nouvelles applications apparurent (la plus spectaculaire étant certainement "l'invisibilité", ou « cloaking » en anglais) et des vérifications expérimentales furent réalisées dans chaque partie du spectre électromagnétique.
Le but de ce paragraphe n'est pas de faire une liste exhaustive de tout ce que l'on peut rencontrer sous le terme de métamatériaux, dont une grande partie est par exemple présentée dans [12]. Nous présentons plutôt trois exemples-phares d'applications les plus importantes – même si elles restent pour certaines lointaines.

I.1.2-a Miniaturisation d'antennes et de circuits

C'est certainement l'application la plus concrète des métamatériaux, puisqu'il existe par exemple déjà des téléphones portables à antennes métamatérielles (par exemple le LG Chocolate BL40, commercialisé en 2009). Les résonateurs électriques et magnétiques développés dans la gamme gigahertz ont été beaucoup étudiés et adaptés pour des applications en télécommunications, et les techniques de fabrication dans ces gammes de fréquence sont aisées. Ainsi, les progrès récents, réalisés notamment en matière d'accordabilité et de magnétisme artificiel, permettent d'améliorer les caractéristiques des antennes (en termes notamment de miniaturisation et d'amélioration de leur directivité).

I.1.2-b Super résolution

Les super-lentilles sont des systèmes très prometteurs qui pourraient permettre d'améliorer fortement certaines techniques d'imagerie, en exploitant non seulement le champ lointain mais aussi ses parties évanescentes. Cependant, dans la situation canonique, ces lentilles nécessiteraient un indice $n = -1$ avec un niveau faible de pertes, ce qui en fait des dispositifs très complexe à fabriquer. J. Pendry , dans son article [10], proposa une manière plus simple d'obtenir une image sub-longueur d'onde en utilisant des lentilles métalliques dans la limite électrostatique. Ce type de lentille, bien que ne possédant pas d'indice négatif, permet la résolution sub-longueur d'onde ainsi que cela fut démontré expérimentalement en 2005 par Fang [13].
Devant la difficulté pour réaliser des super-lentilles, les équipes de chercheurs développèrent d'autres systèmes exploitant les propriétés des métamatériaux pour obtenir une résolution sub-longueur d'onde. Parmi ces nouveaux dispositifs, on peut citer les réseaux de fils [14, 15] fonctionnant en régime dit de canalisation, les réseaux de nanoparticules [16] et, les hyper-lentilles utilisant des structures de forme sphériques et anisotropes [17, 18, 19].
Les cristaux photoniques, bien que n'étant pas à proprement parler des métamatériaux (car les distances entre éléments constitutifs sont de l'ordre de la longueur d'onde), peuvent aussi amener à des effets de réfraction négative et de super résolution, comme cela a été démontré dans [20, 21].

I.1.2-c Camouflage électromagnétique (*cloaking*)

Cette application, bien que relevant quasiment de la science-fiction, a particulièrement capté l'attention du grand public sur les métamatériaux. L'idée est (à nouveau) née d'une publication de J. Pendry en 2006 [22] concernant le contrôle des champs électromagnétiques, et a été vérifié expérimentalement

dans la gamme micro-ondes dans [23]. Elle est basée sur les transformations géométriques de la relativité générale permettant de contrôler en chaque point de l'espace le parcours des ondes électromagnétiques, faisant apparaître des potentialités lointaines telles que la cape d'invisibilité d'Harry Potter ("invisible cloak" en anglais qui a donné son nom à l'application sus-nommée). Le guidage du trajet des rayons lumineux se fait grâce au contrôle des propriétés électromagnétiques du matériau (ε, μ) à l'échelle locale. Ce type d'application ne nécessite pas une permittivité et perméabilité négative, mais de pouvoir contrôler et varier leur valeurs dans l'espace.
Une validation de cette théorie .

I.1.3 Vers les métamatériaux à indice négatif, 3D et isotropes

Nous nous restreignons dans cette section à la sous-catégorie de métamatériaux qui a formé un des centres d'intérêt principaux de nos travaux de thèse : les métamatériaux à indice négatif.
Les métamatériaux à indice négatif ont été les premiers métamatériaux à avoir été imaginés et parmi les premiers à être fabriqués (dans la gamme micro-onde), et nous verrons qu'ils existent maintenant sous une multitude de formes, dans différentes régions du spectre électromagnétique ; nous mentionnerons également les méthodes de fabrication utilisées. Après la présentation des travaux de la littérature récente sur ce sujet, nous aborderons plus spécifiquement au cœur de la problématique de nos travaux, à savoir la modélisation de milieux formés de sphères diélectriques pour l'obtention de métamatériaux à indice négatif, isotropes et tri-dimensionnels.

I.1.3-a Métamatériau à indice négatif

Comme nous l'avons expliqué auparavant, les premiers métamatériaux à indice négatif étaient composés d'un agencement de résonateurs électriques et magnétiques de dimensions millimétriques, résonant dans la gamme micro-onde. Depuis, de nombreuses équipes de recherches ont cherché à faire évoluer ces structures pour qu'elles fonctionnent dans d'autres gammes de fréquences (cf. FIGURE I.5). La gamme des fréquences visibles étant particulièrement visée puisque des applications d'imagerie sub-diffraction seraient une véritable révolution en physique, chimie, biologie et médecine.
Les fréquences de résonance de tels systèmes variant comme l'inverse de la taille des résonateurs, il est nécessaire, pour les faire fonctionner à plus haute fréquence, de miniaturiser les résonateurs [24], ce qui constitue, à partir du domaine submillimétrique et au-delà, l'obstacle majeur pour leur fabrication [25].

Permittivité négative À l'époque de Veselago, on connaissait déjà des matériaux à permittivité négative dans une gamme de fréquence donnée tels que les plasmas gazeux et les métaux. Comme nous l'expliquerons au paragraphe I.2.5-b, dans ces matériaux la permittivité est négative pour des fréquences inférieures à la fréquence plasma (pour les métaux usuels, celle-ci se situe dans la gamme UV). Pour obtenir une permittivité négative dans la gamme micro-onde, on peut utiliser des "wire medium" comme proposé par Brown en 1953 [26] et Rotman [27]. Cette idée fut ensuite reprise par Pendry à la fin des années 90 puis utilisée pour la fabrication du premier métamatériau. On sait maintenant fabriquer des structures donnant une permittivité négative pour quasiment tout le spectre électromagnétique, à partir de tels milieux à fil soit à partir de structures plasmoniques.

Perméabilité négative Veselago avait déjà pointé dans sa publication le fait qu'aucun matériau ne possède naturellement de perméabilité négative à haute fréquence. Hardy et Whitehead [28] proposèrent

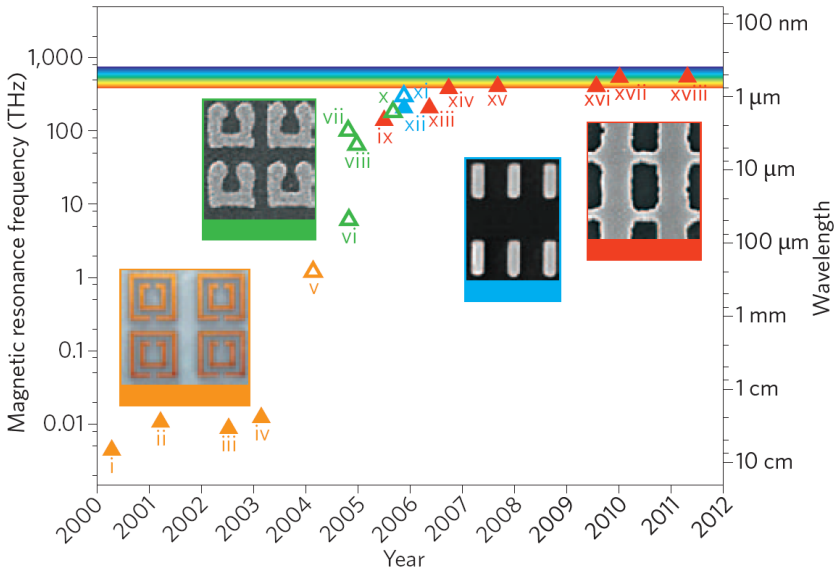

FIGURE I.5 – Evolution des fréquences de fonctionnement des métamatériaux à perméabilité négative (triangles vides) et à indice négatif (triangles pleins).

en 1981 des structures métalliques en forme d'anneau coupé ("split-ring" en anglais) fonctionnant dans le micro-onde et dont les courants induits donnent naissance à une forte réponse magnétique. Pendry reprit et améliora ces structures, pour montrer en 1999 qu'elles pouvaient donner naissance à une perméabilité négative dans la gamme micro-onde [7]. Avec l'émergence des métamatériaux et des moyens technologiques de miniaturisation par lithographie, plusieurs groupes étendirent ces structures de "split-ring resonators" (SRR) pour les faire fonctionner jusque dans le proche infrarouge [29, 30, 31] (c.f. FIGURE I.6).

Le principal inconvénient de ces structures planes est leur anisotropie, mais il existe cependant des

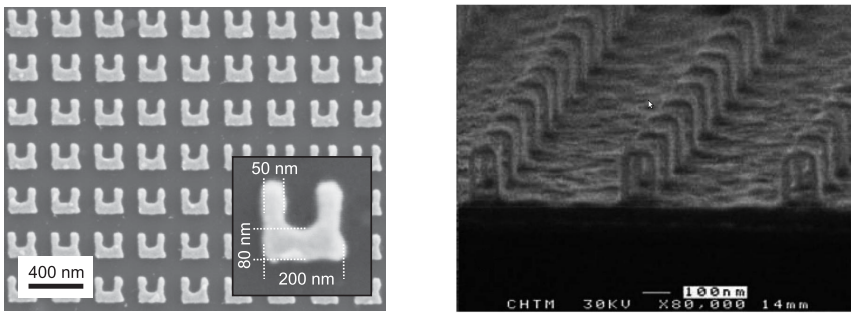

FIGURE I.6 – Exemple de métamatériaux à perméabilité négative à base de résonateurs de tailles nanométriques et fonctionnant dans l'infrarouge ($\lambda_0 \approx 1.5\,\mu m$) issu de [30] (à gauche) et de [31] (à droite).

moyens de les rendre isotropes [32].

Indice négatif L'idée originale pour obtenir des métamatériaux à indice négatif était de superposer, à la même fréquence, l'effet de permittivité et de perméabilité négatives grâce aux structures proposées ci-dessus. Cependant, il ne s'agit pas de l'unique solution et il existe des structures dont les mêmes

constituants élémentaires donnent à la fois une perméabilité et permittivité négative. Parmi ces structures, nous pouvons citer les paires de bâtonnets métalliques [33], les structures fishnet [34, 35], les structures en forme omega [36] ou des structures dendritiques [37] (c.f. FIGURE I.7).

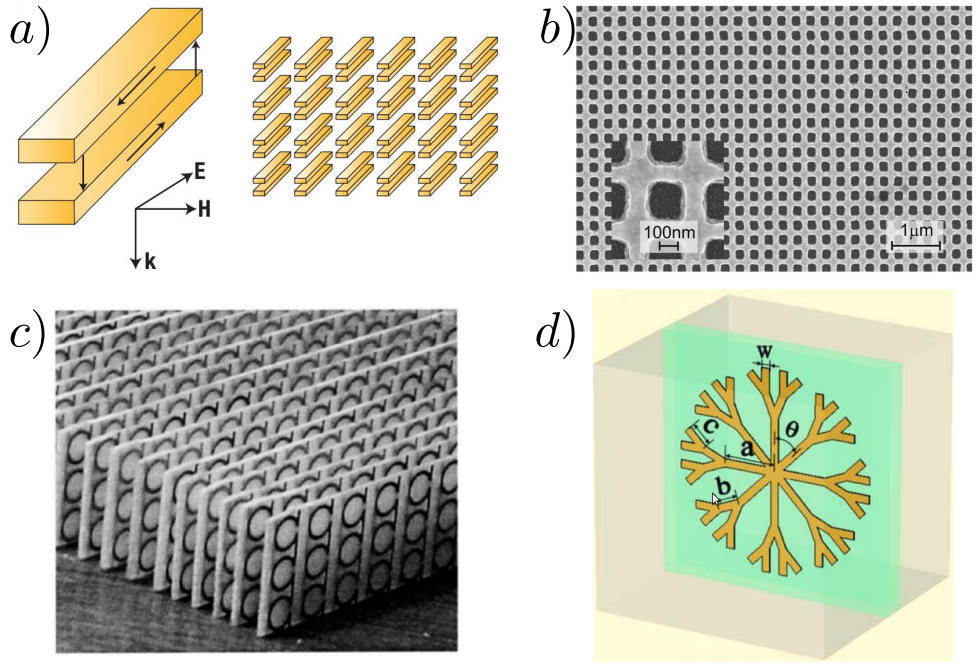

FIGURE I.7 – Différents types de métamatériaux à indice négatif. En a) des paires de batonnets d'or de 780 nm de long donnant un indice négatif à $\lambda_0 \approx 1.5\,\mu$m (figure tirée de [33]). En b) structure fishnet issue de [35] donnant un indice négatif à $\lambda_0 = 780\,$nm. En c) structure omega de dimensions millimétriques tirée de [36], donnant un indice négatif à $\nu = 12.6\,$GHz. En d) représentation de la cellule unitaire, de dimensions millimétriques, de la structure dendritique proposée dans [37], donnant un indice négatif aux alentours de $\nu \approx 10\,$GHz,

Même si certaines des structures introduites dans ce paragraphe peuvent fonctionner dans le visible, elles sont sont intrinsèquement bidimensionnelles car issues de processus de lithographie, fortement anisotropes et possèdent des pertes spécifiques associées aux courants électroniques dans les métaux les composant. On peut en superposant plusieurs couches les rendre partiellement tridimensionnelles, et il existe aussi des moyens de les rendre isotropes [38], mais ces structures restent complexes et coûteuses à réaliser à des échelles nanométriques. Ces limitations rendent ces structures inadéquates pour de nombreuses applications, notamment pour réaliser des superlentilles dans le visible ; de nouvelles structures doivent donc être imaginées pour aller plus loin.

I.1.3-b Métamatériaux tridimensionnels et isotropes à base de particules diélectriques

Une alternative aux métamatériaux plans et métalliques présentés dans le dernier paragraphe, sont les métamatériaux à base de particules sphériques résonantes immergées dans un milieu hôte. L'utilisation de sphères bien plus petites que la longueur d'onde de travail assure l'isotropie de ces métamatériaux dont les propriétés proviennent des résonances plasmon dans le cas de sphères métalliques, ou des résonances dipolaires de Mie dans le cas de sphères diélectriques.

Un moyen envisagé pour fabriquer ces métamatériaux pour les rendre réellement tridimensionnels est d'utiliser les méthodes d'auto-assemblage. Peu avant le commencement de nos travaux de thèse, plusieurs projets ayant pour objectif l'élaboration de métamatériaux ont été lancé par des équipes complémentaires, issues de différents laboratoires européens et bordelais, dont le Centre de Recherche Paul Pascal où une partie de notre thèse de doctorat a été préparée.

La particularité de ces projets et d'utiliser l'auto-assemblage, une des spécialités du centre de Recherche Paul Pascal. À l'inverse des méthodes classiques de lithographie donnant des métamatériaux bidimensionnels, l'auto-assemblage est une technique dite « ascendante » (« bottom-up » en anglais), basée sur la synthèse chimique associée à des méthodes physico-chimiques permettant une mise en forme et une structuration tridimensionnelles. Le principe est d'exploiter les progrès réalisés en matière de synthèse de nano- et microparticules et de les utiliser comme bloc élémentaire résonant donnant la réponse électromagnétique locale voulue.

Les capacités actuelles de synthèse de nanoparticules permettent en particulier d'envisager la fabrication de résonateurs nanométriques pour la création de métamatériaux fonctionnant à des longueurs d'onde visibles : le savoir-faire des chimistes permet maintenant la synthèse de toute sorte de structures hybrides (coeur-écorce, particules "Janus", bâtonnets, ...) de différentes compositions, formes et tailles, qui devraient satisfaire les exigences des théoriciens concevant les métamatériaux.

Pour le lecteur désireux d'en savoir plus sur les possibilités des synthèses chimiques et des techniques d'auto-assemblage, une description plus complète peut être trouvée dans [39].

Néanmoins, la gamme visible n'est pas la seule où des applications métamatériaux seraient intéressantes : la gamme térahertz en est un autre exemple. C'est dans ce contexte que nos travaux de thèse ont porté sur l'étude théorique de métamatériaux à indice négatif, tridimensionnels et isotropes dans la gamme térahertz, qui puissent être fabriqués à partir de particules diélectriques organisées dans l'espace par des méthodes d'auto-assemblage.

Les métamatériaux à base d'éléments diélectriques résonants ont connu un essor dans les dernières années comme une alternative aux structures métalliques ; on pourra notamment en trouver une revue complète dans la référence [40]. Nous présentons ci-dessous un bref état de l'art des principales avancées théoriques et démonstrations expérimentales pour les métamatériaux à base de particules diélectriques résonantes de Mie.

Les premiers travaux théoriques sur des matériaux composites constitués de particules sphériques immergées dans un milieu-hôte diélectrique ont été produits par L. Lewin en 1947 [41], bien avant que la notion de métamatériau existe. Dans cet article précurseur, Lewin montre comment calculer la permittivité et perméabilité effective du matériau composite en utilisant les coefficients de Mie, et mentionne la possibilité d'obtenir un matériau possédant des propriétés magnétiques autour de la résonance des particules, alors même qu'aucun des matériaux le constituant n'a de propriétés magnétiques.

Après l'émergence des métamatériaux, les premiers designs faisant usage des résonances de Mie de particules diélectrique furent l'oeuvre de S. O'Brien et J. Pendry qui prouvèrent également que l'on peut obtenir une forte réponse magnétique (et même une perméabilité négative) dans la gamme gigahertz à partir de cylindres diélectriques de fortes permittivité [42]. K. Huang et al. montrèrent un peu plus tard la même chose dans l'infrarouge à partir de cylindres de matériaux polaritoniques résonants[43].

Les travaux sur les sphères diélectriques, qui ont l'avantage par rapport aux cylindres de donner une réponse isotrope, furent initiés en 2003 par C. Holloway et al. [44] qui démontrèrent théoriquement que l'on peut obtenir un métamatériau à indice négatif à partir de sphères formés d'un matériau diélectrique et magnétique immergées dans un milieu hôte. Cependant, les valeurs géantes requises dans ce schéma pour les perméabilités du matériau constitutif des sphères semblent impossibles à obtenir en pratique.

Poursuivant la voie ouverte par Lewin, un cas plus réaliste, exploitant les propriétés à résonance (de Mie) de sphères purement diélectriques est publié par O. Vendik et al.en 2005 [45]. Ces travaux montrent comment obtenir un MTM à indice négatif dans le gigahertz avec des arrangements bidisperses de particules diélectriques de haute permittivité. Une amélioration de ce calcul, avec la prise en compte des contributions des deux types de sphères, fut apportée par L. Jylhä et al. en 2006 [46].
En 2005, à quelques mois d'intervalle, V. Yannopapas et al. [47] et M. Wheeler et al. [48], calculèrent théoriquement qu'avec des sphères formé du même matériau polaritonique que [43], il est possible d'obtenir des propriétés de magnétisme artificiel à des fréquences infrarouge. Un an plus tard, M. Wheeler et al. [49] calculèrent qu'il est également possible d'obtenir un indice négatif à partir de particules sphériques coeur-écorce, combinant une résonance magnétique et électrique. Plusieurs confirmations expérimentales de ces publications théoriques furent réalisées, démontrant l'obtention de la permittivité négative [50, 51], la perméabilité négative [50, 52, 53, 54, 55], et l'indice négatif dans certains de ces schémas [56, 57, 58, 52, 59].
À l'exception de [44], ces travaux théoriques et vérifications expérimentales ont tous comme point commun l'utilisation des résonances de Mie de diélectriques de forte permittivité.

Il est intéressant de constater que l'ensemble des travaux que nous venons de mentionner sur les structures à base de particules diélectriques ont été effectués soit dans la gamme micro-ondes (de 1 à 20 GHz) en considérant des céramiques ferroélectriques, soit dans l'infrarouge (au delà de 3 THz) en utilisant les résonances polaritoniques de matériaux. Le seul résultat dans la bande térahertz intermédiaire (allant de 20 GHz à 3 THz) est une démonstration expérimentale des résonances de Mie d'une couche de cubes de TiO_2 obtenus par lithographie, donnant une permittivité négative et une perméabilité négative (à des fréquences distinctes) [60].

Dans le cadre de notre doctorant, nous nous sommes donc intéressés à cette dernière gamme des fréquences térahertz, non complètement élucidée du coté des schémas théoriques ; en particulier, la transposition des schémas validés dans la gamme micro-onde au térahertz ne découle pas d'une simple mise à l'échelle, car les propriétés des matériaux constitutifs des particules changent complètement entre ces deux gammes. L'objectif de nos travaux a donc été de donner les éléments théoriques nécessaires pour la réalisation pratique d'un métamatériau à perméabilité, puis à indice négatif, dans la gamme térahertz à partir de particules diélectriques résonantes (matériau constitutif, taille des sphères, concentration dans la matrice, tolérance sur la dispersion en taille, etc.).

Dans la section qui suit, après les rappels des lois de base de l'électromagnétisme, nous présentons les outils spécifiques utilisés pour la description analytique des milieux composites ainsi que pour leur simulation numérique.

I.2 Propriétés électromagnétiques des matériaux et métamatériaux

Dans cette section nous rappelons les bases d'électromagnétisme nécessaire à la compréhension de ce manuscrit. Nous commençons par rappeler les équations de Maxwell et leurs conséquences pour la propagation des ondes électromagnétiques dans le vide et les milieux.

I.2.1 Propagation de la lumière dans le vide

Nous nous intéressons tout d'abord aux équations régissant la propagation des ondes dans le vide sans considérer la question de leurs naissances. Ces équations décrivent le comportement des champs électriques **E** et magnétiques **B** d'une onde électromagnétique.

I.2.1-a Les équations de Maxwell dans le vide et l'équation d'onde

Les équations de Maxwell dans le vide sont les suivantes :

$$\nabla\cdot\mathbf{B} = 0 \tag{I.1a}$$

$$\nabla\cdot\mathbf{E} = 0 \tag{I.1b}$$

$$\nabla\times\mathbf{E} = -\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t} \tag{I.1c}$$

$$\nabla\times\mathbf{B} = \mu_0\varepsilon_0\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t} \tag{I.1d}$$

où les grandeurs $\varepsilon_0 \simeq 8.854\cdot10^{-12}\,\mathrm{F/m}$ et $\mu_0 \simeq 1.257\cdot10^{-6}\,\mathrm{H/m}$ sont la permittivité et la perméabilité du vide, respectivement.
En utilisant (I.1c) et (I.1d), on obtient la relation :

$$\nabla(\nabla\cdot\mathbf{E}) - \nabla^2\mathbf{E} = -\mu_0\varepsilon_0\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2}.$$

Or, d'après l'équation (I.1b), $\nabla\cdot\mathbf{E} = 0$, ce qui permet d'obtenir la classique équation d'onde (équation de d'Alembert) :

$$\nabla^2\mathbf{E} - \varepsilon_0\mu_0\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \tag{I.2}$$

La même relation est obtenue pour **B** à partir du rotationnel de (I.1d) :

$$\nabla^2\mathbf{B} - \varepsilon_0\mu_0\frac{\partial^2\mathbf{B}}{\partial t^2} = 0 \tag{I.3}$$

I.2.1-b Les ondes planes monochromatiques

De manière générale, les solutions des équations d'onde (I.2) et (I.3) peuvent être extrêmement complexes. Cependant, les équations de Maxwell étant linéaires, le théorème de superposition de Fourier permet de décomposer toutes solutions de (I.2) et (I.3) en une somme d'ondes planes. On peut donc considérer la solution particulière en onde plane suivante pour étudier les solutions de l'équation d'onde (I.2) :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}_0 e^{i(\mathbf{kr}-\omega t)} \tag{I.4}$$

Cette équation décrit une onde de pulsation ω et d'amplitude $|\mathbf{E}_0|$ se propageant suivant la direction du vecteur d'onde $\mathbf{k}$. $\mathbf{E}_0$ a des composantes réelles pour une polarisation rectiligne et complexes pour une polarisation elliptique. Le vecteur d'onde $\mathbf{k}$ décrit la direction et le sens de propagation de l'onde.
Soulignons que nous avons choisi la convention habituellement utilisée par les opticiens pour la représentation harmonique du champ en $e^{-i\omega t}$. On peut proposer exactement la même solution pour $\mathbf{B}$:

$$\mathbf{B}(\mathbf{r},t) = \mathbf{B}_0 e^{i(\mathbf{kr}-\omega t)},$$

Ces champs sont des vecteurs du plan complexe dont seule la partie réelle a une signification physique et peut être mesurée expérimentalement :

$$\mathrm{Re}(\mathbf{E}) = \mathrm{Re}(\mathbf{E}_0 e^{i(\mathbf{kr}-\omega t)}), \qquad \mathrm{Re}(\mathbf{B}) = \mathrm{Re}(\mathbf{B}_0 e^{i(\mathbf{kr}-\omega t)})$$

En prenant comme base celle des ondes planes, les opérateurs élémentaires s'écrivent :

$$\nabla = i\mathbf{k} \quad et \quad \frac{\partial}{\partial t} = -i\omega \tag{I.5}$$

En appliquant la solution en onde plane (I.4) aux équations de Maxwell dans le vide, celles-ci deviennent :

$$i\mathbf{k}\cdot\mathbf{B} = 0 \tag{I.6a}$$
$$i\mathbf{k}\cdot\mathbf{E} = 0 \tag{I.6b}$$
$$i\mathbf{k}\times\mathbf{E} = i\omega\mathbf{B} \tag{I.6c}$$
$$i\mathbf{k}\times\mathbf{B} = -i\mu_0\varepsilon_0\omega\mathbf{E} \tag{I.6d}$$

D'après (I.6a) et (I.6b), $\mathbf{k} \perp \mathbf{E}$ et $\mathbf{k} \perp \mathbf{B}$ ce qui assure que le vecteur d'onde $\mathbf{k}$ est perpendiculaire au plan de polarisation formé par $\mathbf{E}$ et $\mathbf{B}$ d'une onde plane dans le vide : c'est une onde dite transverse électrique et magnétique (TEM). De plus, d'après (I.6c) ou (I.6d), le trièdre $\mathbf{k}$, $\mathbf{E}$, $\mathbf{B}$ est direct et $\mathbf{B} \perp \mathbf{E}$.

I.2.1-c Relation de dispersion dans le vide

Nous résolvons maintenant l'équation d'onde (I.2) en prenant comme solution une onde plane se propageant dans le vide avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_0$:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}_0 e^{i(\mathbf{k}_0\mathbf{r}-\omega t)}$$

On définit le laplacien vectoriel $\Delta = \nabla^2$ et l'opérateur $\dfrac{\partial^2}{\partial t^2}$ à l'aide du vecteur $\mathbf{k}_0$ de la même manière que (I.5) :

$$\Delta = \nabla^2 = -k_0^2 \qquad \frac{\partial^2}{\partial t^2} = -\omega^2$$

En remplaçant ces valeurs dans l'équation d'onde (I.2), on obtient :

$$-k_0^2\mathbf{E} + \omega^2\varepsilon_0\mu_0\mathbf{E} = 0$$

On obtient ainsi l'équation de dispersion :

$$k_0^2 = \omega^2 \varepsilon_0 \mu_0 \tag{I.7}$$

On définit la vitesse de propagation de la lumière dans le vide c :

$$c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}} \approx 3 \cdot 10^8 \,\mathrm{m/s}$$

D'après (I.7), on trouve également que le module du vecteur d'onde dans le vide a pour expression :

$$|\mathbf{k}_0| = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda_0}$$

où $\lambda_0 = cT = \dfrac{c}{\nu}$ est la longueur d'onde dans le vide.

I.2.2 Propagation de la lumière dans un milieu

Après ces rappels sur la propagation des ondes électromagnétiques dans le vide, nous résolvons maintenant les équations de Maxwell pour des ondes électromagnétiques se propageant dans un milieu supposé homogène et linéaire.

I.2.2-a Les équations de Maxwell dans les milieux et l'équation d'onde

Dans un milieu matériel, les équations de Maxwell sont les suivantes :

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \tag{I.8a}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \tag{I.8b}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{J} \tag{I.8c}$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \tag{I.8d}$$

où $\mathbf{D}$ est le vecteur déplacement électrique, $\mathbf{H}$ le vecteur excitation magnétique, ρ la densité volumique de charges libres et $\mathbf{J}$ le vecteur densité de courant, issue de ces charges libres.
Les relations constitutives reliant les vecteurs $\mathbf{D}$ et $\mathbf{B}$ à $\mathbf{E}$ et $\mathbf{H}$ sont pour un matériau linéaire :

$$\begin{pmatrix} \mathbf{D} \\ \mathbf{B} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \overline{\overline{\varepsilon}} & \overline{\overline{\zeta}} \\ \overline{\overline{\xi}} & \overline{\overline{\mu}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{E} \\ \mathbf{H} \end{pmatrix} \tag{I.9}$$

où $\overline{\overline{\varepsilon}}$ est le tenseur de permittivité, $\overline{\overline{\mu}}$ le tenseur de perméabilité et $\overline{\overline{\zeta}}$ et $\overline{\overline{\xi}}$ sont les tenseurs traduisant le couplage magnéto-électrique. Dans le cas bi-anisotrope le plus général, le nombre de paramètres constitutifs du matériau est de 36 (4×9 coefficients pour chaque tenseur). Ces paramètres sont complexes pour un matériau ayant des pertes, représentées par les parties imaginaires.
En l'absence de couplage magnéto-électrique et pour un matériau isotrope, les tenseurs $\overline{\overline{\zeta}} = \overline{\overline{\xi}} = \overline{\overline{0}}$, $\overline{\overline{\varepsilon}} = \varepsilon \cdot \overline{\overline{I}}$ et $\overline{\overline{\mu}} = \mu \cdot \overline{\overline{I}}$, $\overline{\overline{I}}$ représentant le tenseur unité de rang 2. Dans ce cas le nombre de paramètres se réduit à 2 et

les relations constitutives deviennent scalaires :

$$\mathbf{D} = \varepsilon\mathbf{E} = \varepsilon_0\varepsilon_r\mathbf{E} \tag{I.10a}$$

$$\mathbf{B} = \mu\mathbf{H} = \mu_0\mu_r\mathbf{H} \tag{I.10b}$$

où ε_r est la permittivité complexe relative du milieu et μ_r sa perméabilité complexe relative. Dans le cas du vide, $\varepsilon_r = \mu_r = 1$, et par substitution dans (I.8), on retrouve les équations de Maxwell (I.1) du paragraphe précédent. Dans la suite de cette partie, nous considérerons un milieu neutre ($\rho = 0$) et non conducteur ($\mathbf{J} = \mathbf{0}$). Les équations de Maxwell deviennent alors :

$$\nabla\cdot\mathbf{B} = 0$$
$$\nabla\cdot\mathbf{D} = 0$$
$$\nabla\times\mathbf{B} = \mu\varepsilon\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t}$$
$$\nabla\times\mathbf{E} = -\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t}$$

c'est-à-dire qu'elles ont a même forme que dans le vide, en remplaçant ε_0 et μ_0 par les paramètres ε et μ correspondant au milieu considéré. En manipulant ces équations comme dans la partie 1, on obtient l'équation d'onde dans le milieu matériel :

$$\nabla^2\mathbf{E} - \varepsilon\mu\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \tag{I.11}$$

Il est important de remarquer que la condition de milieu non conducteur n'est pas impérative et qu'on peut retrouver la même forme d'équation en considérant un milieu de conductivité complexe σ, pour lequel $\mathbf{J}$ et $\mathbf{E}$ obéissent à la relation :

$$\mathbf{J} = \sigma\mathbf{E}$$

L'équation de Maxwell (I.8c) devient alors :

$$\nabla\times\mathbf{B} = \mu\left(\mathbf{J} + \varepsilon\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t}\right) = \mu\left(\sigma\mathbf{E} + \varepsilon\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t}\right)$$

Or avec une dépendance temporelle en $e^{-i\omega t}$, on a $\dfrac{\partial\mathbf{E}}{\partial t} = -i\omega\mathbf{E}$, et on peut donc récrire :

$$\nabla\times\mathbf{B} = \mu\left(\frac{i\sigma}{\omega}\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t} + \varepsilon\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t}\right) = \mu\left(\frac{i\sigma}{\omega} + \varepsilon\right)\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t} = \mu\varepsilon_{éq}\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t}$$

Avec la permittivité généralisée :

$$\varepsilon_{éq} = \frac{i\sigma}{\omega} + \varepsilon \tag{I.12}$$

Les équations de Maxwell ont alors à nouveau la même forme que dans le vide :

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$$
$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0$$
$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu \varepsilon_{\text{éq}} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}$$
$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}$$

I.2.2-b Relation de dispersion dans les milieux

Nous résolvons maintenant l'équation (I.11) en utilisant, comme précédemment, une solution particulière sous la forme d'une onde plane de vecteur d'onde **k** :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}_0 \mathrm{e}^{i(\mathbf{kr}-\omega t)}$$

En appliquant cette solution particulière aux équations de Maxwell dans un milieu, celles-ci deviennent :

$$\mathbf{k} \cdot \mathbf{B} = 0$$
$$\mathbf{k} \cdot \mathbf{E} = 0$$
$$\mathbf{k} \times \mathbf{E} = \omega \mu \mathbf{H}$$
$$\mathbf{k} \times \mathbf{H} = -\varepsilon_{\text{éq}} \omega \mathbf{E}$$

Elles se résolvent alors de la même manière que précédemment et on obtient l'équation de dispersion suivante :

$$k^2 = \omega^2 \varepsilon_{\text{éq}} \mu \tag{I.13}$$

Il est à noter que pour un matériau réel présentant des pertes, $\varepsilon_{\text{éq}}$ et μ sont complexes, donc k est aussi une grandeur complexe. Sa partie réelle décrit la propagation de l'onde alors que sa partie imaginaire l'atténuation de cette dernière dans le milieu.

I.2.2-c Indice optique d'un milieu

On définit l'indice optique d'un milieu par la relation :

$$n = \frac{k}{k_0}$$

ce qui donne : $n^2 = k^2/k_0^2 = (\varepsilon_{\text{éq}}\mu)/(\varepsilon_0\mu_0) = \varepsilon_{\text{r}}\mu_{\text{r}}$, d'où :

$$n = (\varepsilon_{\text{r}}\mu_{\text{r}})^{1/2} \tag{I.14}$$

avec les paramètres ε_{r}, μ_{r}, qui sont en général complexes.
Cette expression est bien définie lorsque les deux parties réelles de ε_{r} et de μ_{r} sont positives, ou lorsqu'une

des deux est négative (comme c'est le cas pour les matériaux classiques). Mais lorsque les deux parties réelles sont négatives simultanément, il faut considérer avec attention la définition de la racine carrée complexe et notamment faire un choix adéquat de la coupure de branche de la fonction racine dans le plan complexe.

Pour illustrer la situation, nous avons représenté en exemple sur la FIGURE I.8, les arguments de ε_r, μ_r, du produit $\varepsilon_r \cdot \mu_r$ et de n dans le plan complexe, pour deux coupures de branche différentes. En utilisant

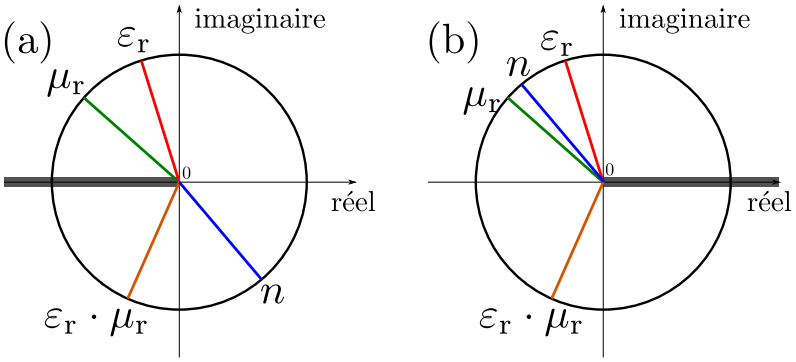

FIGURE I.8 – Représentation dans le plan complexe des arguments de ε_r, μ_r, de leur produit et de $n = (\varepsilon_r \mu_r)^{1/2}$ dans le cas d'une coupure de branche : (a) $]-\infty, 0[$ (b) $]0, \infty[$.

la coupure de branche (a) sur cette figure, tout nombre complexe $z = \rho e^{i\theta}$ de module ρ et d'argument θ s'écrit :

$$\begin{cases} \theta \in [-\pi, \pi[\\ \rho \in [0, +\infty[\end{cases} \tag{I.15}$$

Dans l'exemple de la figure, on voit que, lorsque les parties réelles de ε_r et μ_r sont simultanément négatives (avec des parties imaginaires positives), l'indice n du milieu est avec cette définition positif mais avec une partie imaginaire négative, ce qui va a l'encontre du principe fondamental de passivité. De plus, pour le cas de ε_r et de μ_r strictement réels (sans pertes) et négatifs, on voit qu'il y a une ambiguïté puisque $\theta = -\pi$ ou π, et suivant ce choix on obtient soit un indice positif : $n = +\sqrt{\mathrm{Re}(\varepsilon_r)\mathrm{Re}(\mu_r)}$, soit négatif : $n = -\sqrt{\mathrm{Re}(\varepsilon_r)\mathrm{Re}(\mu_r)}$. Ce choix de coupure dans le plan complexe est donc à proscrire pour la définition de la racine carrée complexe.

Maintenant, en utilisant la coupure de branche (b), tout nombre complexe z est défini par :

$$\begin{cases} \theta \in [0, 2\pi[\\ \rho \in [0, +\infty[\end{cases} \tag{I.16}$$

Comme on peut le voir sur la figure, en reprenant comme précédemment le cas de parties réelles de ε_r et μ_r simultanément négatives (avec des parties imaginaires positives), on observe que l'indice n a cette fois une partie réelle *négative* et une partie imaginaire positive, respectant le principe de passivité. De plus, pour le cas de ε_r et de μ_r strictement réels (sans pertes) et négatifs, on a pour ces deux nombres complexes un argument $\theta = +\pi$. Le produit $\varepsilon_r \mu_r$ a donc un argument égal à 2π, et l'indice a un argument $\theta = 2\pi/2 = \pi$, c'est-à-dire qu'il est *réel négatif*. On trouve bien ainsi la formule donnée par Veselago pour un milieu sans pertes de permittivité et de perméabilité simultanément négatives :

$$n = -\sqrt{\varepsilon_r \mu_r} \qquad \text{pour } \varepsilon_r < 0, \mu_r < 0 \tag{I.17}$$

qui correspond à un indice optique négatif. C'est ainsi la coupure de branche du cas (b) qui doit être retenue pour donner des solutions physiquement acceptables de l'indice optique dans le cas général de valeurs quelconques de la permittivité et de la perméabilité.

I.2.2-d Impédance d'un milieu

L'impédance est une notion de première importance en électronique ou dans la description des lignes à transmission. Cette notion peut s'étendre à de nombreux domaines de la physique, et, comme de nombreuses théories des métamatériaux utilisent le formalisme des lignes à transmission, il est utile de définir cette notion en électromagnétisme :

$$Z = \frac{|\mathbf{E}_0|}{|\mathbf{H}_0|}$$

Cette définition donne, en utilisant les équations de Maxwell :

$$Z = \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon}} \tag{I.18}$$

Dans le vide, cette impédance vaut :

$$Z = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} = 376.6\,\Omega$$

I.2.3 Théorème de Poynting et flux d'énergie

I.2.3-a Théorème général

Nous rappelons ici le théorème de Poynting, décrivant la conservation de l'énergie, à partir des équations de Maxwell. Le détail de la démonstration pourra être trouvé dans l'Annexe I.
On définit le vecteur de Poynting $\mathbf{\Pi}$:

$$\mathbf{\Pi} = \mathbf{E} \times \mathbf{H} \tag{I.19}$$

Le théorème de Poynting appliqué à un volume V, d'élément de surface $\mathrm{d}\Sigma$ et de vecteur $\mathbf{n}$ sortant et normal à la surface est :

$$-\oiint_S \mathbf{\Pi}\cdot\mathbf{n}\,\mathrm{d}\Sigma = \iiint_V \mathbf{J}\cdot\mathbf{E}\,\mathrm{d}V + \frac{1}{2}\iiint_V \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon E^2 + \mu H^2)\,\mathrm{d}V \tag{I.20}$$

Cette relation traduit la conservation de l'énergie, en indiquant que le flux entrant d'énergie électromagnétique (lié au vecteur de Poynting) est égal à la puissance dissipée par effet Joule (liée à $\mathbf{J}\cdot\mathbf{E}$) plus la variation d'énergie électromagnétique dans le volume V. On constate également que le flux du vecteur de Poynting à travers une surface donne donc la puissance rayonnée à travers celle-ci, c'est-à-dire le flux d'énergie par unité de temps. Le vecteur de Poynting donne ainsi la direction du flux d'énergie porté par une onde électromagnétique. On voit que par définition (46) les vecteurs $\mathbf{\Pi}$, $\mathbf{E}$, $\mathbf{H}$ forment un trièdre direct.

I.2.3-b Forme du théorème pour des champs harmoniques en notation complexe

Pour des champs harmoniques en notation complexe, le théorème de Poynting s'écrit (démonstration dans l'Annexe I) :

$$-\oiint_S \mathrm{Re}(\mathbf{\Pi})\cdot\mathbf{n}\,\mathrm{d}\Sigma = \frac{1}{2}\iiint_V \left[(\mathrm{Re}(\sigma)+\omega\mathrm{Im}(\varepsilon))|E|^2+\omega\mathrm{Im}(\mu)|H|^2)\right]\,\mathrm{d}V \tag{I.21}$$

Cette relation montre que le flux moyen (sur une période) entrant dans le volume V y est dissipé, sous l'effet de la conductivité, de la permittivité, et de la perméabilité du milieu. Dans un milieu diélectrique ($\sigma = 0$), on voit ainsi que les pertes sont directement données par les parties imaginaires de ε et de μ.

I.2.4 Vitesses de phase et de groupe

I.2.4-a Vitesse de phase

Nous considérons maintenant une onde plane monochromatique se propageant suivant l'axe des x, de vecteur d'onde $\mathbf{k} = k\,\hat{\mathbf{e}}_x$. Nous supposons en plus que le milieu est sans perte, et donc que k est réel. L'équation de l'onde est la suivante :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{i(kx-\omega t)} \tag{I.22}$$

et la phase totale de cette onde est égale à $kx-\omega t+\varphi$, avec φ la phase à l'origine associée à $\mathbf{E}_0$.
Si on cherche à connaître la vitesse de déplacement d'un point (immatériel) de l'onde associé à une phase donnée, on écrit que la phase de ce dernier reste inchangée après un déplacement Δx en une durée Δt.

$$\begin{aligned} kx-\omega t+\varphi &= k(x+\Delta x)-\omega(t+\Delta t)+\varphi \\ \Rightarrow \frac{\Delta x}{\Delta t} &= \frac{\omega}{k} \end{aligned}$$

cette vitesse de propagation, dite vitesse de phase v_φ est donnée par :

$$v_\varphi = \frac{\Delta x}{\Delta t} = \frac{\omega}{k} \tag{I.23}$$

Dans le vide, on en déduit d'après l'équation (I.7) que la vitesse de phase est :

$$v_\varphi = \frac{\omega}{k_0} = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0\mu_0}} = c$$

Dans un milieu avec pertes, k devient complexe et la vitesse de phase est alors donnée par $v_\varphi = \dfrac{\omega}{\mathrm{Re}(k)}$ [2]. D'après (I.13) on a :

$$v_\varphi = \frac{1}{\mathrm{Re}(\sqrt{\varepsilon\mu})} = \frac{c}{\mathrm{Re}(n)}$$

Comme nous l'avons mentionné en introduction, dans un métamatériau à indice négatif, la vitesse de phase devient négative et pointe dans une direction opposé au vecteur de Poynting.

I.2.4-b Vitesse de groupe

La notion de vitesse de groupe est une notion parfois délicate, dont l'usage dans certains cas fait l'objet de nombreux débats. La démonstration et les commentaires que nous livrons ici sont tirés de

[61] et [3]. Jusqu'à présent, grâce au principe de superposition, nous avons considéré seulement le cas d'ondes planes monochromatiques, de fréquence parfaitement définie. Cependant, en réalité, ce type d'onde idéale n'existe pas. En effet, d'après le principe d'incertitude d'Heisenberg :

$$\Delta\omega\Delta t \geq 1,$$

pour une onde monochromatique ($\Delta\omega = 0$), la durée d'émission du train d'onde doit être infinie ($\Delta t = \infty$). En pratique, la durée de l'impulsion lumineuse étant finie, il existe nécessairement un étalement des fréquences : $\Delta\omega \neq 0$.

Nous considérons maintenant une impulsion lumineuse sous la forme d'un paquet d'ondes planes se propageant le long de l'axe (Ox), et décrite par un scalaire par souci de simplicité (par exemple une composante du champ réel). Lorsque le milieu est dispersif, $\omega = \omega(k)$, chaque fréquence présente dans l'impulsion a sa propre vitesse de phase. En utilisant les notations de Fourier, on peut écrire cette onde sous la forme :

$$u(x,t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} A(k) \mathrm{e}^{ikx - i\omega(k)t} \mathrm{d}k \tag{I.24}$$

où la fonction $A(k)$ représente le spectre, en fréquences spatiales, de l'impulsion lumineuse (pour une onde monochromatique, $A(k)$ est une fonction delta de Dirac).

La propagation d'une impulsion de spectre étroit ou, de manière équivalente, d'un milieu faiblement dispersif peut être traité de la manière approchée suivante. La relation de dispersion s'écrit :

$$\omega(k) = \omega_0 + \left.\frac{\mathrm{d}\omega}{\mathrm{d}k}\right|_{\omega_0} (k - k_0) + \ldots$$

En remplaçant dans l'expression (I.24), on obtient :

$$u(x,t) \approx \frac{\mathrm{e}^{it\left(\left.\frac{\mathrm{d}\omega}{\mathrm{d}k}\right|_{\omega_0} k_0 - \omega_0\right)}}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} A(k) \mathrm{e}^{ik\left(x - \left.\frac{\mathrm{d}\omega}{\mathrm{d}k}\right|_{\omega_0} t\right)} \mathrm{d}k = u\left(x - \left.\frac{\mathrm{d}\omega}{\mathrm{d}k}\right|_{\omega_0} t, 0\right) \mathrm{e}^{it\left(\left.\frac{\mathrm{d}\omega}{\mathrm{d}k}\right|_{\omega_0} k_0 - \omega_0\right)}$$

Ainsi à un facteur de phase près, cette impulsion se propage, sans distorsion dans le matériau, avec une vitesse, dite de groupe :

$$v_g = \left.\frac{\mathrm{d}\omega}{\mathrm{d}k}\right|_{\omega_0} \tag{I.25}$$

La vitesse de groupe correspond à la vitesse de propagation de l'enveloppe de l'impulsion. Si on considère l'énergie associée à l'amplitude de cette impulsion, il est clair que dans le cadre des conditions énoncées, l'énergie se propage à la vitesse de groupe, puisque c'est la vitesse de propagation de l'impulsion.

Pour un milieu dispersif, on a :

$$k = n(\omega)\frac{\omega}{c}$$

et ainsi, la vitesse de groupe est égale à :

$$v_g = \frac{c}{n + \omega\left(\dfrac{\partial n}{\partial \omega}\right)}$$

Pour des matériaux non dispersifs les vitesses de groupe et de phase sont égales. Dans le cas le plus général, il n'existe cependant aucune relation entre la vitesse de phase v_φ et la vitesse de groupe v_g, comme cela a été démontré pour des matériaux à indice positif [61], ainsi que récemment, pour les métamatériaux à indice négatif [62]. Il est important de noter que dès que l'absorption devient importante, l'approximation utilisée n'est plus valide et la notion de vitesse de groupe perd, dans la plupart des cas, son sens [3].

I.2.5 Comportement électromagnétique des différents types de matériaux

Nous décrivons, dans cette partie, le comportement électromagnétique des différents types de matériaux naturels. Comme nous avons pu le voir un peu plus haut avec les relations constitutives (I.10), chaque matériau est caractérisé par un jeu de paramètres ε et μ, qui donne sa réponse électrique et magnétique, respectivement. Cependant, il est à noter que de manière générale, ces grandeurs sont dépendantes de la fréquence, et ainsi, leurs dénominations et caractéristiques (matériau magnétique, conducteur, diélectrique, etc ...) dépendent fortement de la gamme de fréquence considérée. Nous verrons, par exemple, qu'un métal est un bon conducteur seulement à basse fréquence, et qu'il devient diélectrique à des fréquences suffisamment hautes.
Le classement des matériaux proposé ci-dessous est qualitatif, non exhaustif et ne considère que les matériaux isotropes.

I.2.5-a Propriétés des matériaux magnétiques

Les matériaux présentent des propriétés magnétiques quand leur perméabilité est différente de μ_0. Ceux pour lesquels $\mu > \mu_0$ sont dits paramagnétiques, et ceux pour lesquels $\mu < \mu_0$ sont dits diamagnétiques. Les champions dans ces catégories sont le Bismuth, élément le plus diamagnétique, et le Fer, qui dans certaines conditions peut présenter une perméabilité très élevée (ferromagnétisme). Cependant, ces comportements magnétiques sont très sensibles à la fréquence et parfois à la température (pour les ferromagnétiques). Ainsi, on n'observe plus de comportement magnétique pour des fréquences supérieures à quelques dizaines de gigahertz. Nous verrons dans la suite qu'un des objectifs de la fabrication de métamatériaux est d'obtenir des propriétés magnétiques aux fréquences où le magnétisme naturel disparaît.

I.2.5-b Diélectriques et métaux

Lorsque le magnétisme est absent ($\mu = \mu_0$), et on peut classer les matériaux en deux catégories différentes suivant qu'ils possèdent ou non des charges libres :

- **les diélectriques** sont des matériaux qui ne possèdent pas de charges électriques libres. Ce sont des isolants électriques dont la permittivité est positive . Dans certaines gamme de fréquences, leur permittivité peut atteindre des valeurs élevées ($\varepsilon > 1000$ dans le GHz par exemple).
- **les métaux** sont des matériaux qui possèdent des électrons libres. Leurs propriétés électromagnétiques sont étroitement liées au comportement des électrons libres et dépendent fortement de la fréquence.

Dans la suite, nous résolvons l'équation de dispersion (I.13) pour ces deux types de matériaux et nous verrons ainsi comment les ondes se propagent dans ces matériaux.

Les diélectriques Les diélectriques sont des matériaux non conducteurs dont la partie réelle de la permittivité est positive. Nous décomposons la permittivité du matériau de la manière suivante : $\varepsilon = \varepsilon' + i \cdot \varepsilon''$ où, $\varepsilon' = \mathrm{Re}(\varepsilon)$ et $\varepsilon'' = \mathrm{Im}(\varepsilon)$.
Dans ce cas, l'équation de dispersion (I.13) avec $\varepsilon' > 0$ donne :

$$k^2 = \omega^2 \mu_0 (\varepsilon' + i \cdot \varepsilon'')$$

$$k = \pm\omega\sqrt{\varepsilon'\mu_0}\left(1 + i \cdot \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'}\right)^{\frac{1}{2}}$$

En règle générale, $\dfrac{\varepsilon''}{\varepsilon'} \ll 1$ et nous pouvons effectuer un développement limité du dernier terme :

$$k \approx \pm\omega\sqrt{\varepsilon'\mu_0}\left(1 + i \cdot \frac{1}{2}\frac{\varepsilon''}{\varepsilon'}\right)$$

En ne gardant que la solution positive, c'est-à-dire celle représentant les ondes qui se propagent dans le sens positif, on peut réécrire le vecteur d'onde de la manière suivante :

$$k = \alpha + i\beta$$

avec $\alpha = \omega\sqrt{\varepsilon'\mu_0}$ et $\beta = \varepsilon''\dfrac{\omega}{2}\sqrt{\dfrac{\mu_0}{\varepsilon'}}$.
En remplaçant k dans l'équation de l'onde plane se propageant suivant l'axe des x (I.22), on obtient :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{i(kx-\omega t)} = \mathbf{E}_0 e^{i(\alpha x-\omega t)} e^{-\beta x}$$

Cette solution représente une onde atténuée se propageant suivant l'axe des x. On remarque que seul le facteur d'atténuation β dépend de ε''. Comme établi avec le théorème de Poynting (c.f. I.2.3), la partie imaginaire de la permittivité décrit les pertes du diélectrique ; dans les matériaux présentant des valeurs de ε'' élevées, l'onde peut se propager mais est fortement absorbée.

Les métaux Les métaux sont des matériaux conducteurs, et, comme nous l'avons expliqué à la section I.2.2-a, on peut leur assigner une permittivité équivalente (I.12) qui dépend de leur conductivité σ et de la contribution des électrons liés $\varepsilon_{\text{liés}}$:

$$\varepsilon_{\text{éq}} = \left(\frac{i\sigma(\omega)}{\omega} + \varepsilon_{\text{liés}}(\omega)\right) \tag{I.26}$$

Leur conductivité est principalement due aux électrons libres dont le comportement peut être décrit par le modèle de Drude [63]. Grâce à ce modèle, on peut obtenir la conductivité du métal en fonction de la densité de charges N du matériau, de la charge de l'électron e, de la masse de l'électron m et du taux de collisions γ :

$$\sigma(\omega) = \frac{Ne^2}{m(\gamma - i\omega)}$$

On peut distinguer deux types de comportement de la conductivité : à basse fréquence ($\omega \ll \gamma$) et à haute fréquence ($\omega \gg \gamma$).

A basse fréquence ($\omega \ll \gamma$) À basse fréquence, le taux de collisions est dominé par les collisions des électrons avec le réseau (loi d'Ohm), et γ est de l'ordre de $10^{14}\,\mathrm{s}^{-1}$. Donc pour des fréquences $\nu \ll 10^{14}\,\mathrm{Hz}$, la dépendance en fréquence est négligeable, la conductivité est essentiellement réelle et tend vers la valeur de la conductivité statique réelle σ_0 :

$$\text{Pour :} \quad \gamma \gg \omega \quad \Rightarrow \quad \sigma(\omega) \simeq \sigma_0 = \frac{Ne^2}{m\gamma}$$

De plus $\left|\dfrac{i\sigma_0}{\omega}\right| \gg |\varepsilon_{\text{liés}}(\omega)|$, on peut ainsi négliger entièrement la contribution des électrons liés dans l'expression (I.26). Dans ces conditions, la permittivité équivalente vaut :

$$\varepsilon_{\text{éq}} \simeq \frac{i\sigma_0}{\omega}$$

L'équation de dispersion (I.13) s'écrit alors :

$$k^2 = \omega^2 \varepsilon_{\text{éq}} \mu_0 = i\omega\sigma_0\mu_0$$

d'où :

$$k = \pm\sqrt{\omega\sigma_0\mu_0}\cdot \mathrm{e}^{i\frac{\pi}{4}}$$

En ne gardant que la solution positive c'est-à-dire celle représentant les ondes qui se propagent dans le sens positif, on peut, comme dans le paragraphe précédent réécrire le vecteur d'onde de la manière suivante :

$$k = \alpha + i\beta$$

Avec $\alpha = \beta = \sqrt{\omega\sigma_0\mu_0/2}$.
En remplaçant k dans l'équation de l'onde plane se propageant suivant l'axe des x (I.22), on obtient :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \mathrm{e}^{i(kx-\omega t)} = \mathbf{E}_0 \mathrm{e}^{i(\alpha x-\omega t)} \mathrm{e}^{-\beta x}$$

Cette solution représente une onde atténuée se propageant suivant l'axe des x. Le facteur d'atténuation β est proportionnel à $\sqrt{\sigma_0}$. Pour les bons conducteurs, la conductivité statique peut atteindre des valeurs de l'ordre de $10^8\,\mathrm{S/m}$ (cuivre par exemple), le terme $\mathrm{e}^{-\beta x}$ décroit ainsi rapidement avec la distance x et l'onde ne pénètre par dans le matériau. On peut définir la profondeur de pénétration du métal comme la distance pour laquelle l'onde est atténuée d'un facteur e^{-1}. Puisque l'énergie électromagnétique ne peut pénétrer à l'intérieur du matériau, celui-ci est réfléchissant aux longueurs d'ondes considérées.

A haute fréquence ($\omega \gg \gamma$) À haute fréquence, la conductivité change radicalement de comportement et sa partie imaginaire n'est plus négligeable. Nous nous restreignons ici à décrire les métaux dits de Drude, pour lesquels le modèle de Drude reste valable. On supposera que les modes de polarisation des électrons liés ne peuvent répondre suffisament vite aux fréquences considérées, et donc que $\varepsilon_{\text{liés}}(\omega) \simeq \varepsilon_0$. En remplaçant l'expression de la conductivité dans l'équation (I.26), on obtient :

$$\varepsilon_{\text{éq}}(\omega) = \varepsilon_0 \left(1 + \frac{iNe^2}{m\varepsilon_0\omega(\gamma - i\omega)}\right)$$

$$\varepsilon_{éq}(\omega) = \varepsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma}\right) \tag{I.27}$$

avec $\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{m\varepsilon_0}}$ la fréquence plasma du métal considéré. Pour $\omega \gg \gamma$, l'équation (I.27) devient :

$$\varepsilon_{éq}(\omega) = \varepsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}\right)$$

Ainsi, au-dessus de la fréquence plasma ($\omega > \omega_p$), $\varepsilon > 0$: le matériau se comporte comme un diélectrique, transparent aux ondes électromagnétiques. Pour $\omega < \omega_p$, $\varepsilon < 0$ et nous devons résoudre l'équation de dispersion pour ce nouveau cas. Avec $\varepsilon_{éq}(\omega) = -|\varepsilon_{éq}|$:

$$k^2 = -\omega^2 |\varepsilon_{éq}| \mu_0$$

$$k = \pm i\omega \sqrt{|\varepsilon_{éq}| \mu_0}$$

En prenant la solution positive et en remplaçant dans (I.22), on remarque qu'elle n'a plus de terme propagatif :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{i(kx - \omega t)} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t} e^{-\omega \sqrt{|\varepsilon_{éq}| \mu_0} x}$$

En effet, il s'agit d'une onde évanescente dont l'amplitude diminue exponentiellement. L'onde ne pénètre pas dans le matériau et tout comme dans le cas à basse fréquence, elle est réfléchie. Les miroirs usuels exploitent cette propriété de haute réflectance, car ils comportent une fine couche de métal dont la fréquence plasma est situé dans l'ultraviolet .

Concluons en signalant que la théorie de Drude seule ne permet une description précise de certains métaux (notamment l'or et l'argent) au-delà des fréquences infrarouges. En effet, la contribution des électrons liées devient parfois très importante à ces fréquences élevées (à travers les transitions interbandes décrites par un modèle d'oscillateurs de Lorentz) et ne peut donc pas être négligée dans le calcul des propriétés optiques de ces métaux.

I.3 Conclusions

Ce chapitre d'introduction nous a permis de présenter l'univers des métamatériaux et d'aborder leurs principales propriétés. Après avoir détaillé les principales caractéristiques (composition, fréquences de fonctionnement, méthodes de fabrication) des métamatériaux à indice négatif, nous avons pu exposer la problématique de cette thèse à savoir la modélisation de métamatériaux à indice négatif, tridimensionnels et isotropes dans la gamme THz, et fabriqués par des méthodes d'auto-assemblage à base de sphères diélectriques . Afin de pouvoir y répondre, nous avons, dans la seconde partie de chapitre rappelée les bases d'électromagnétisme nécessaire à la compréhension de ce manuscrit ainsi que des précautions à prendre lorsqu'on a affaire aux métamatériaux.

Dans le chapitre suivant, nous présenterons les outils analytiques et numériques que nous avons utilisés pour l'étude des métamatériaux à bases de sphères diélectriques.

Chapitre II

Outils analytiques et numériques

Dans notre travail de thèse, nous nous sommes intéressés aux métamatériaux formés de particules sphériques dispersées dans un milieu diélectrique hôte. Dans ce chapitre, nous présentons les outils mathématiques et numériques utilisés dans nos travaux. Le principe des métamatériaux que nous avons étudiés repose sur l'accumulation des résonances individuelles de particules sphériques afin d'obtenir la réponse globale désirée. La première étape nécessaire est ainsi la description de la réponse individuelle des particules. Ce problème a été résolu par Mie au début du XX^{e} siècle.

II.1 Théorie de Mie : diffusion de la lumière par une particule sphérique

Cette théorie fut établie au début du XX^{e} siècle et sa paternité fut attribué à Mie mais Lorenz semble aussi être un bon candidat. Elle résout de manière analytique et exacte le problème de la diffusion d'une onde par une particule sphérique. Malgré son importance, elle n'a été utilisée en pratique qu'après l'arrivée des ordinateurs de forte puissance, en raison de la complexité de ses solutions. Le principe est de calculer à l'aide des conditions de passage entre deux milieux, le champ diffusé et le champ intérieur à la sphère quand celle-ci est illuminée par une onde plane. Nous reprenons ici largement la présentation de Bohren & Huffman [64]. Pour mener à bien le calcul, il est nécessaire dans un premier temps d'exprimer l'onde plane sur une base d'harmoniques sphériques plus adaptée à la géométrie du problème.

II.1.1 Les harmoniques sphériques vectorielles

Les champs **E** et **H** dans un milieu linéaire, homogène, isotrope satisfont les équations d'onde (I.11) qui peuvent se récrire dans le cas d'une onde plane de vecteur d'onde **k** et de pulsation ω :

$$\nabla^2\mathbf{E} + k^2\mathbf{E} = 0, \qquad \nabla^2\mathbf{H} + k^2\mathbf{H} = 0, \tag{II.1}$$

où $k^2 = \omega^2\mu\,\varepsilon$ d'après l'équation de dispersion (I.13).
Nous avons de plus, d'après les équations de Maxwell :

$$\nabla\cdot\mathbf{E} = 0, \qquad \nabla\cdot\mathbf{H} = 0, \tag{II.2}$$

$$\nabla\times\mathbf{E} = i\omega\mu\mathbf{H}, \qquad \nabla\times\mathbf{H} = -i\omega\varepsilon\mathbf{E}. \tag{II.3}$$

Nous cherchons à établir une base d'harmoniques sphériques vectorielles qui soit compatible avec les équations (II.1), (II.2) et (II.3) et permette ainsi de décomposer **E** et **H**. Construisons, pour cela, un vecteur **M** à partir d'une fonction scalaire Λ, pour l'instant quelconque, et d'un vecteur arbitraire constant **c** :

$$\mathbf{M} = \nabla\times(\mathbf{c}\Lambda)$$

La divergence d'un rotationnel étant nulle, **M** satisfait la relation :

$$\nabla\cdot\mathbf{M} = 0$$

On trouve alors que :

$$\nabla^2\mathbf{M} + k^2\mathbf{M} = \nabla\times[\mathbf{c}(\nabla^2\Lambda + k^2\Lambda)]$$

M satisfait donc l'équation d'onde (II.1) si Λ satisfait l'équation scalaire :

$$\nabla^2\Lambda + k^2\Lambda = 0 \tag{II.4}$$

On peut également construire le vecteur **N** de divergence nulle tel que :

$$\mathbf{N} = \frac{\nabla\times\mathbf{M}}{k}$$

On peut montrer que ce vecteur vérifie également l'équation d'onde [64] :

$$\nabla^2\mathbf{N} + k^2\mathbf{N} = 0$$

et que son rotationnel est relié à **M** par :

$$\nabla\times\mathbf{N} = k\mathbf{M}$$

Donc les vecteurs **N** et **M** vérifient les propriétés (II.1)(II.2)(II.3) et possèdent ainsi toutes les propriétés d'un champ électromagnétique. Ainsi la résolution vectorielle de l'équation d'onde est ainsi ramenée au problème plus simple de la résolution de l'équation scalaire en Λ. Cette fonction scalaire Λ est appelée fonction génératrice des vecteurs harmoniques **M** et **N** et le vecteur **c** est appelée vecteur pilote.

Le choix de la fonction génératrice est déterminée par la géométrie du problème et, dans ce cas, nous utiliserons un Λ vérifiant l'équation d'onde scalaire en coordonnées sphériques ρ,θ,ϕ (FIGURE II.1). Le choix du vecteur pilote **c** est moins évident et nous pourrions choisir un vecteur **c** arbitraire. Cependant, dans le cas d'une sphère, le plus simple est de choisir $\mathbf{c} = \boldsymbol{\rho}$, ce qui donne un vecteur **M** partout orthogonal au vecteur rayon $\boldsymbol{\rho}$.

L'équation scalaire (II.4) exprimée en coordonnées sphériques s'écrit :

$$\frac{1}{\rho^2}\frac{\partial}{\partial\rho}\left(\rho^2\frac{\partial\Lambda}{\partial\rho}\right) + \frac{1}{\rho^2\sin\theta}\frac{\partial}{\partial\theta}\left(\sin\theta\frac{\partial\Lambda}{\partial\theta}\right) + \frac{1}{\rho^2\sin\theta}\frac{\partial^2\Lambda}{\partial\phi^2} + k^2\Lambda = 0 \tag{II.5}$$

On en cherche des solutions particulières sous la forme de variables séparées :

$$\Lambda(\rho,\theta,\phi) = R(\rho)\Theta(\theta)\Phi(\phi)$$

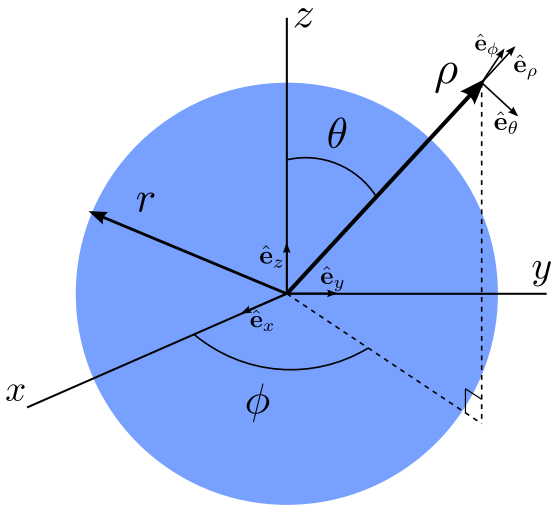

FIGURE II.1 – Système de coordonnées sphériques associé à la sphère diffusante de rayon r (en couleur).

La séparation des variables entraîne, par substitution dans (II.5), l'obtention d'un système de 3 équations :

$$\frac{d^2\Phi}{d\phi^2} + m^2\Phi = 0 \tag{II.6a}$$

$$\frac{1}{\sin\theta}\frac{d}{d\theta}\left(\sin\theta\frac{d\Theta}{d\theta}\right) + \left[n(n+1) - \frac{m^2}{\sin^2\theta}\right]\Theta = 0 \tag{II.6b}$$

$$\frac{d}{d\rho}\left(\rho^2\frac{dR}{d\rho}\right) + [k^2\rho^2 - n(n+1)]R = 0 \tag{II.6c}$$

où m et n sont des constantes dites de séparation.
Les solutions linéairement indépendantes de (II.6a) sont de la forme :

$$\Phi_e = \cos(m\phi) \qquad \Phi_o = \sin(m\phi)$$

avec m entier.
L'équation (II.6b) quant à elle a pour solutions les fonctions de Legendre associées $P_n^m(cos\theta)$ du premier type, de degré n et d'ordre m. Ces fonctions sont orthogonales entre elles.
Enfin, les solutions linéairement indépendantes de l'équation (II.6c) sont les fonctions de Bessel sphériques du premier type $j_n(u)$ et du second type $y_n(u)$. Pour simplifier les calculs qui vont suivre, il est utile d'introduire les fonctions de Bessel du troisième type (ou fonctions de Hankel), qui sont également solutions de (II.6c), en tant que combinaisons linéaires de $j_n(u)$ et $y_n(u)$ [64] :

$$h_n^{(1)}(u) = j_n(u) + iy_n(u), \qquad h_n^{(2)}(u) = j_n(u) - iy_n(u)$$

Grâce aux solutions du système d'équations (II.6), on peut construire les fonctions génératrices qui satisfont l'équation (II.5) :

$$\Lambda_{emn} = \cos(m\phi)P_n^m(cos\theta)z_n(k\rho) \tag{II.7}$$

$$\Lambda_{omn} = \sin(m\phi)P_n^m(cos\theta)z_n(k\rho) \tag{II.8}$$

où z_n désigne l'une des trois fonctions de Bessel sphérique, dont le choix est déterminé par les conditions aux limites. De plus grâce à la complétude des familles de fonctions composant Λ_{emn} et Λ_{omn}, celles-ci forment également une base complète et toute solution de (II.5) peut être décomposée en une série infinie des fonctions (II.7) et (II.8). Les harmoniques sphériques vectorielles associées à ces fonctions sont alors :

$$\mathbf{M_{emn}} = \nabla \times (\boldsymbol{\rho}\Lambda_{emn}) \qquad \mathbf{M_{omn}} = \nabla \times (\boldsymbol{\rho}\Lambda_{omn})$$
$$\mathbf{N_{emn}} = \frac{\nabla \times \mathbf{M_{emn}}}{k} \qquad \mathbf{N_{omn}} = \frac{\nabla \times \mathbf{M_{omn}}}{k}$$

II.1.2 Le développement de Mie

Nous considérons maintenant la diffusion d'une onde plane polarisée suivant la direction $\hat{\mathbf{e}}_x$, se propageant suivant la direction $\hat{\mathbf{e}}_z$ dans un milieu-hôte d'indice $n_\mathrm{h} = \sqrt{\varepsilon_\mathrm{h}\mu_\mathrm{h}}$, par une particule sphérique de rayon r et d'indice $n_\mathrm{p} = \sqrt{\varepsilon_\mathrm{p}\mu_\mathrm{p}}$. Dans ce qui suit, nous utiliserons l'indice « h » pour tout ce qui concerne le milieu-hôte et l'indice « p » pour tout ce qui concerne les particules. L'équation de l'onde plane est la suivante :

$$\mathbf{E}_i = E_0 \mathrm{e}^{ik_\mathrm{h}\rho\cos\theta}\hat{\mathbf{e}}_x \tag{II.9}$$
$$\mathbf{H}_i = H_0 \mathrm{e}^{ik_\mathrm{h}\rho\cos\theta}\hat{\mathbf{e}}_y \tag{II.10}$$

avec $k_\mathrm{h} = k_0 \cdot n_\mathrm{h}$, le module du vecteur d'onde dans le milieu-hôte. L'expression de $H_0 = \dfrac{k_\mathrm{h}E_0}{\omega\mu_\mathrm{h}}$ est obtenue en utilisant l'équation (II.3).
On peut ensuite exprimer cette onde plane sur la base des harmoniques sphériques vectorielles précédentes, ce qui donne, après un calcul fastidieux [64] :

$$\mathbf{E}_i = E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \left(\mathbf{M}_{o1n}^{(1)} - i\mathbf{N}_{e1n}^{(1)}\right) \tag{II.11}$$

Le champ magnétique correspondant est obtenu à partir du rotationnel de (II.11) :

$$\mathbf{H}_i = -\frac{k_\mathrm{h}}{\omega\mu_\mathrm{h}} E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \left(\mathbf{M}_{e1n}^{(1)} + i\mathbf{N}_{o1n}^{(1)}\right) \tag{II.12}$$

L'exposant (1) dans ces équations signifie que la dépendance radiale de la fonction génératrice est spécifiée par j_n. En effet, le champ incident étant fini à l'origine, j_n est la fonction appropriée pour décrire son comportement : $z_n(k\rho) = j_n(k\rho)$ [64].
Nous voulons aussi développer le champ diffusé par la sphère, ($\mathbf{E}_s$,$\mathbf{H}_s$), ainsi que le champ à l'intérieur de la sphère, ($\mathbf{E}_\mathrm{p}$,$\mathbf{H}_\mathrm{p}$), sur la base des harmoniques sphériques vectorielles. Pour cela, on écrit la condition de continuité des composantes tangentielles des champs $\mathbf{E}$ et $\mathbf{H}$ au passage de la surface de la sphère. Dans le cas général, ces conditions de passage en tout point x appartenant à la surface S de normale $\hat{\mathbf{n}}$ s'écrivent :

$$[\mathbf{E}_2(x) - \mathbf{E}_1(x)] \times \hat{\mathbf{n}} = 0,$$
$$[\mathbf{H}_2(x) - \mathbf{H}_1(x)] \times \hat{\mathbf{n}} = 0,$$

Ce qui, dans la configuration géométrique utilisée (FIGURE II.1), se traduit par :

$$\left(\mathbf{E}_i + \mathbf{E}_s - \mathbf{E}_\mathrm{p}\right) \times \hat{\mathbf{e}}_\rho = \left(\mathbf{H}_i + \mathbf{H}_s - \mathbf{H}_\mathrm{p}\right) \times \hat{\mathbf{e}}_\rho = 0 \tag{II.13}$$

Cette dernière condition, avec l'orthogonalité entre les harmoniques sphériques et la forme de l'expansion du champ incident, dictent la forme du champ diffusé et du champ à l'intérieur de la sphère. Le champ à l'intérieur de la sphère étant fini en son centre, la dépendance radiale de la fonction génératrice est donc, là aussi, spécifiée par j_n (exposant (1)) :

$$\mathbf{E}_\mathrm{p} = \sum_{n=1}^{\infty} E_n \left(c_n \mathbf{M}_{o1n}^{(1)} - i d_n \mathbf{N}_{e1n}^{(1)} \right) \tag{II.14}$$

$$\mathbf{H}_\mathrm{p} = -\frac{k_\mathrm{p}}{\omega \mu_\mathrm{p}} \sum_{n=1}^{\infty} E_n \left(d_n \mathbf{M}_{e1n}^{(1)} + i c_n \mathbf{N}_{o1n}^{(1)} \right) \tag{II.15}$$

ici $E_n = i^n E_0 (2n+1)/n(n+1)$ et le vecteur d'onde dans la sphère $k_\mathrm{p} = k_0 n_\mathrm{p}$.

Pour le champ diffusé, bien que les fonctions j_n et y_n puissent décrire correctement le comportement du champ, il est plus commode d'utiliser la fonction $h_n^{(1)}$ qui se comporte à l'infini comme une onde sphérique sortante. Ainsi, la forme du champ diffusé est :

$$\mathbf{E}_s = \sum_{n=1}^{\infty} E_n \left(i a_n \mathbf{N}_{e1n}^{(3)} - b_n \mathbf{M}_{o1n}^{(3)} \right) \tag{II.16}$$

$$\mathbf{H}_s = \frac{k_\mathrm{h}}{\omega \mu_\mathrm{h}} \sum_{n=1}^{\infty} E_n \left(i b_n \mathbf{N}_{o1n}^{(3)} + a_n \mathbf{M}_{e1n}^{(3)} \right) \tag{II.17}$$

où l'exposant (3) indique que $z_n(k\rho) = h_n^{(1)}(k\rho)$.
Le champ électromagnétique diffusé par la sphère a été écrit comme une série infinie d'harmoniques sphériques vectorielles. Le champ diffusé par la sphère est donc une superposition de ces modes (harmoniques sphériques) pondérés par les coefficients a_n et b_n. Nous pouvons déterminer les coefficients de diffusion de Mie en projetant l'équation (II.13) sur $\hat{\mathbf{e}}_\theta$ et $\hat{\mathbf{e}}_\phi$. Tout d'abord, on obtient les coefficients de Mie du champ à l'intérieur de la sphère :

$$c_n = \frac{\mu_\mathrm{p} j_n(\tau)[\tau h_n^{(1)}(\tau)]' - \mu_\mathrm{p} h_n^{(1)}(\tau)[\tau j_n(\tau)]'}{\mu_\mathrm{p} j_n(m\tau)[\tau h_n^{(1)}(\tau)]' - \mu_\mathrm{h} h_n^{(1)}(\tau)[m\tau j_n(m\tau)]'} \tag{II.18}$$

$$d_n = \frac{\mu_\mathrm{p} m j_n(\tau)[\tau h_n^{(1)}(\tau)]' - \mu_\mathrm{p} m h_n^{(1)}(\tau)\,[\tau j_n(\tau)]'}{\mu_\mathrm{h} m^2 j_n(m\tau)[\tau h_n^{(1)}(\tau)]' - \mu_\mathrm{p} h_n^{(1)}(\tau)[m\tau j_n(m\tau)]'} \tag{II.19}$$

ainsi que, les coefficients de Mie du champ diffusé par la sphère :

$$a_n = \frac{\mu_\mathrm{h} m^2 j_n(m\tau)[\tau j_n(\tau)]' - \mu_\mathrm{p} j_n(\tau)[m\tau j_n(m\tau)]'}{\mu_\mathrm{h} m^2 j_n(m\tau)[\tau h_n^{(1)}(\tau)]' - \mu_\mathrm{p} h_n^{(1)}(\tau)[m\tau j_n(m\tau)]'} \tag{II.20}$$

$$b_n = \frac{\mu_\mathrm{p} j_n(m\tau)[\tau j_n(\tau)]' - \mu_\mathrm{h} j_n(\tau)[m\tau j_n(m\tau)]'}{\mu_\mathrm{p} j_n(m\tau)[\tau h_n^{(1)}(\tau)]' - \mu_\mathrm{h} h_n^{(1)}(\tau)[m\tau j_n(m\tau)]'} \tag{II.21}$$

Dans les équations (II.18), (II.19), (II.20), (II.21), deux quantités importantes ont été introduites : le paramètre de Mie τ, qui compare le rayon r de la particule à la longueur d'onde λ_h dans le milieu-hôte

($\lambda_h = \lambda_0/n_h$ où λ_0 est la longueur d'onde dans le vide) et le rapport des indices m entre la particule et le milieu-hôte :

$$\tau = k_h r = \frac{2\pi n_h r}{\lambda_0}, \qquad m = \frac{k_p}{k_h} = \frac{n_p}{n_h} \tag{II.22}$$

Lorsque la perméabilité de la sphère et du milieu-hôte sont égales, les coefficients du champ diffusé peuvent s'écrire de manière plus simple :

$$a_n = \frac{m\psi_n(m\tau)\psi_n'(\tau) - \psi_n(\tau)\psi_n'(m\tau)}{m\psi_n(m\tau)\xi_n'(\tau) - \xi_n(\tau)\psi_n'(m\tau)} \tag{II.23}$$

$$b_n = \frac{\psi_n(m\tau)\psi_n'(\tau) - m\psi_n(\tau)\psi_n'(m\tau)}{\psi_n(m\tau)\xi_n'(\tau) - m\xi_n(\tau)\psi_n'(m\tau)} \tag{II.24}$$

où l'on a fait intervenir les fonctions de Ricatti-Bessel :

$$\psi_n(u) = u j_n(u), \qquad \xi_n(u) = u h_n^{(1)}(u) \tag{II.25}$$

Il est ainsi possible, grâce à cette théorie, d'exprimer de manière analytique le champ diffusé par une sphère sous forme d'une série infinie d'harmoniques sphériques. Nous nous intéressons maintenant aux résultats prédits par cette solution de Mie, en étudiant le comportement des coefficients du développement de ce champ, en particulier les premiers d'entre eux.

II.1.3 Coefficients dipolaires de Mie

Le développement en série décrit ci-dessus est un développement multipolaire et les coefficients intervenant dans ce développement sont par conséquent des coefficients multipolaires. Les coefficients a_n sont les coefficients multipolaires électriques d'ordre n et les b_n sont les coefficients multipolaires magnétiques d'ordre n. Les coefficients d'ordre les plus bas sont particulièrement importants et sont appelés, pour $n = 1$, coefficients dipolaires, pour $n = 2$, coefficients quadrupolaires. Dans ce qui suit, nous examinons le comportement de ces coefficients pour des particules non-magnétiques dans un milieu-hôte également non magnétique ($\mu_h = \mu_p = \mu_0$). Nous nous intéresserons au cas où les particules sont très petites devant la longueur d'onde et ensuite, au cas où le contraste des indices est grand.

II.1.3-a Coefficients de Mie pour des particules petites devant la longueur d'onde

Bien que la théorie de Mie soit une théorie analytique exacte, il est difficile, à cause de la complexité des coefficients, de comprendre intuitivement la diffusion des ondes par une sphère. Afin d'éclaircir la situation, nous nous intéressons, en considérant des expressions approximées des coefficients, aux cas où les particules sont très petites devant la longueur d'onde incidente, c'est-à-dire quand $\tau \ll 1$ et $|m|\tau \ll 1$. C'est aussi une configuration souvent rencontrée dans la pratique.
On peut écrire le développement limité des premiers coefficients de diffusion d'une sphère quand $\tau \to 0$ [64] :

$$a_1 = -\frac{i2\tau^3}{3}\frac{m^2-1}{m^2+2} - \frac{i2\tau^5}{5}\frac{(m^2-2)(m^2-1)}{(m^2+2)^2} + \frac{4\tau^6}{9}\left(\frac{m^2-1}{m^2+2}\right)^2 + O(\tau^7) \tag{II.26}$$

$$b_1 = -\frac{i\tau^5}{45}(m^2-1) + O(\tau^7) \tag{II.27}$$

$$a_2 = -\frac{i\tau^5}{15}\frac{m^2-1}{2m^2+3} + O(\tau^7) \tag{II.28}$$

$$b_2 = O(\tau^7) \tag{II.29}$$

Quand $\tau \ll 1$ et $|m|\tau \ll 1$, les termes en τ^3 sont dominants devant ceux en τ^5, et donc dans ces conditions le coefficient $|a_1| \gg |b_1|, |a_2|$. On voit donc que pour des particules très petites devant la longueur d'onde le coefficient dipolaire électrique est dominant dans le développement du champ diffusé. Il est à noter que le premier terme de a_1 (en τ^3) est celui traduisant le phénomène de diffusion de Rayleigh (diffusion pour des particules très petites devant la longueur d'onde).
En observant de plus près l'équation (II.26), on remarque que pour $m^2 = -2$, les dénominateurs de cette équation s'annulent, ce qui correspond physiquement à une résonance du coefficient a_1. Cette résonance dépend uniquement du contraste des indices m entre particules et milieu-hôte ; elle a lieu quand $n_p^2/n_h^2 = -2$, c'est-à-dire quand $\varepsilon_p = -2\varepsilon_h$. Si on considère un milieu-hôte diélectrique avec $\varepsilon_h > 0$, la condition précédente n'est remplie que si $\varepsilon_p < 0$, c'est-à-dire que cette résonance ne se produit que pour les métaux en-dessous de leur fréquence plasma. Elle est connue sous le nom de résonance plasmon de la particule.

II.1.3-b Résonances de Mie dipolaires et quadrupolaires pour des particules diélectriques d'indice élevé

Dans ce paragraphe, nous considérons encore des particules très petites devant la longueur d'onde mais en nous restreignant à des particules diélectriques avec un indice élevé ($\mathrm{Re}(m) \sim 10$). Nous nous intéressons à un autre type de résonances qui sera central dans la suite de ce manuscrit de thèse : les résonances de Mie de la particule.
Suivant les équations de la section précédente, la résonance plasmonique dans le terme a_1 n'existe plus puisque, pour ce type de particule, $\varepsilon_p > 0$. De plus, quand $|m|$ est suffisamment grand le coefficient b_1 devient dominant sur a_2 et la diffusion de la particule pour τ petit est décrite par les seuls coefficients dipolaires a_1 et b_1. Ce résultat est confirmé par la FIGURE II.2, sur laquelle nous montrons le module des premiers coefficients de Mie en fonction du paramètre de Mie τ pour une sphère d'indice élevé et sans pertes ($m = 10$, réel). On voit clairement sur cette figure que les coefficients dipolaires sont plusieurs ordres de grandeurs supérieurs aux quadrupolaires sauf aux alentours de $\tau = 0.45$, où le terme quadrupolaire magnétique b_2 devient dominant sur les coefficients dipolaires ; ce comportement n'est observé que lorsque le matériau ne présente pas de pertes et nous verrons dans le prochain chapitre que lorsque celles-ci sont prises en compte, les termes dipolaires restent dominants partout. Nous remarquons aussi sur la FIGURE des résonances, aux alentours de $\tau = 0.3$ pour b_1 et de $\tau = 0.45$ pour a_1 et b_2. Ce sont les résonances de Mie de la particule, et en particulier, celles de a_1 et b_1 sont les résonances dipolaires de Mie d'ordre le plus bas. La résonance qui apparaît, à fréquence la plus basse, est la résonance dipolaire magnétique, suivie à fréquence plus haute de la résonance dipolaire électrique. Cette dernière a lieu à la même fréquence que la résonance quadrupolaire magnétique. Notons que ces résonances ne sont pas prévues par les développements limités du paragraphe précédent (aucun terme ne diverge dans les équations (II.27) et (II.29)). Nous reviendrons sur ces résonances et leur expression mathématique en détail au cours des prochains chapitres.

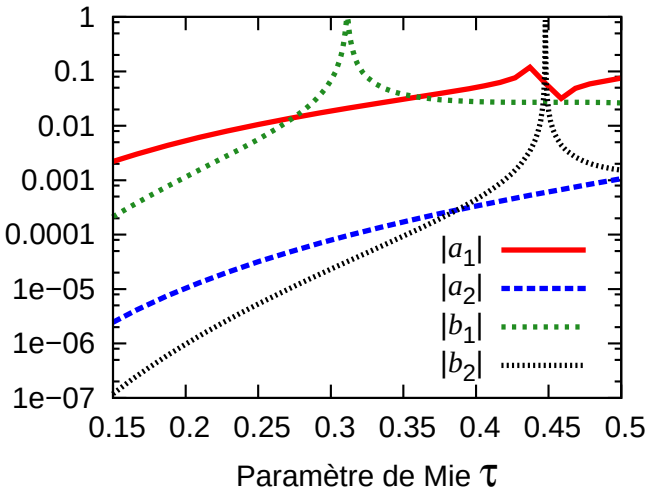

FIGURE II.2 – Premiers coefficients de Mie en fonction de τ pour un matériau sans pertes d'indice élevé ($m = 10$).

II.2 Du microscopique au macroscopique : homogénéisation

Les équations de Maxwell dans les milieux telles que nous les avons écrites jusqu'ici sont des versions macroscopiques dans lesquelles on ne considère que la réponse moyenne du matériau à une excitation électromagnétique. Elles sont obtenues en moyennant les équations de Maxwell microscopiques qui prennent en compte les densités de courants et de charges microscopiques. Le jeu de paramètres macroscopiques du matériau homogène ε et μ correspond donc à une moyenne spatiale de la réponse individuelle des constituants élémentaires du matériau. Cette approche, basée sur une homogénéisation du matériau, n'est possible que lorsqu'il existe une séparation d'échelle entre, d'une part, la longueur d'onde du rayonnement et d'autre part à la taille des constituants élémentaires du matériau ainsi que la distance typique entre eux. Heureusement, pour les plupart des matériaux usuels, ces dimensions sont plusieurs ordres de grandeurs plus petites que la longueur d'onde, et on peut donc utiliser les équations de Maxwell macroscopiques pour décrire leur comportement électromagnétique sur une grande partie du spectre. Pour commencer, nous illustrerons cela avec l'exemple classique d'un cristal solide atomique pour des longueurs d'ondes visibles et nous introduirons la notion de dipôle. Nous rappellerons ensuite la description de Clausius-Mossotti qui relie les polarisabilités microscopiques des constituants élémentaires d'un matériau à ses paramètres macroscopiques. Pour finir, nous aborderons la théorie de Maxwell Garnett, théorie du milieu effectif permettant la description de certains types de matériaux composites.

II.2.1 Ordres de grandeur dans un cristal solide

Les matériaux cristallins sont composés d'atomes régulièrement espacés et formant une maille particulière. Dans la plupart des cristaux, la distance entre plus proches voisins a est de l'ordre de l'angström ou de la dizaine d'angströms. Pour se faire une idée de la gamme spectrale sur laquelle les équations de Maxwell macroscopiques décrivent correctement le comportement électromagnétique d'un cristal, on peut évaluer le nombre d'atomes du cristal par longueur d'onde. Prenons l'exemple d'un cristal commun, le sel ou chlorure de sodium : la distance entre plus proches voisins est $a = 5,6\,\text{Å}$. Le nombre d'atome

par longueur d'onde, pour une illumination dans le bleu-vert ($\lambda \approx 500\,\text{nm}$), est :

$$\frac{\lambda}{a} \approx \frac{500 \cdot 10^{-9}}{5 \cdot 10^{-10}} = 1000 \tag{II.30}$$

Ainsi, chaque longueur d'onde incidente excite la réponse d'environ 1000 atomes. Une telle réponse va donc être une réponse collective et justifie l'utilisation des équations de Maxwell macroscopiques. La limite supérieure généralement acceptée pour considérer un milieu homogène moyen et lui appliquer les équations de Maxwell macroscopiques est $d < \frac{\lambda}{10}$ (avec d la taille des particules ou la distance inter-particule). Pour les cristaux usuels, cela correspond à des longueurs d'onde minimales d'environ 10 nm (rayons X). En-deçà de cette limite, les détails microscopiques (comme la structure du champ électromagnétique entre les atomes) et les phénomènes de diffraction doivent être pris en compte (l'étude de la structure des cristaux par diffraction X en est un exemple connu).

II.2.2 Champs dipolaires et polarisabilité

Ici nous rappelons les bases sur les champs dipolaires électriques et magnétiques. Ces grandeurs seront de première importance pour la suite. Les définitions utilisées ici sont celles de [3].

Dipôle électrique On appelle dipôle électrostatique un ensemble de 2 charges $\pm q$ séparées par une distance d (voir FIGURE II.3). Le moment dipolaire électrique associé à un tel dipôle est $\mathbf{p} = q \cdot \mathbf{d}$.

Cette notion assez simple de dipôle électrostatique peut être généralisée pour décrire de nombreux

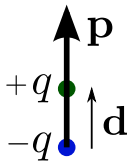

FIGURE II.3 – Dipôle électrostatique.

systèmes plus complexes. On considère maintenant la situation de la FIGURE II.4, avec un ensemble de N charges électriques q_i, positives et négatives dont l'ensemble est neutre, définies par leurs positions $d_i(t)$, dépendant du temps. On peut montrer que lorsque l'on se place à grande distance de l'ensemble

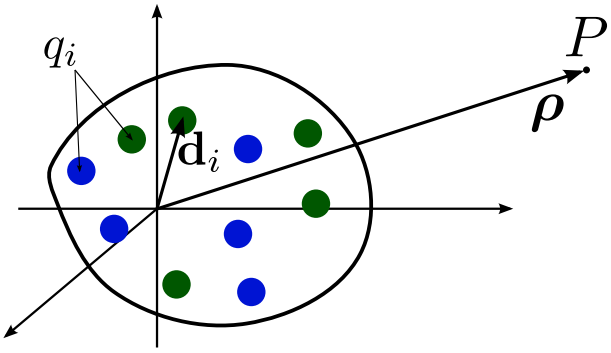

FIGURE II.4 – Ensemble de $\frac{N}{2}$ charges positives et $\frac{N}{2}$ charges négatives qui à grande distance peut être assimilé à un dipôle.

de charges, c'est-à-dire $|\boldsymbol{\rho}| \gg |\mathbf{d}_i|$, le champ rayonné en P est en première approximation équivalent au champ rayonné par le moment dipolaire [65, 3] :

$$\mathbf{p}(t) = \sum_i^N q_i \mathbf{d}_i(t) \tag{II.31}$$

Les champs électriques et magnétiques rayonnés dans le vide par un dipôle électrique définis par (II.31) sont, en réutilisant les notations de II.1 :

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\frac{e^{ik\rho}}{\rho}\left\{k^2(\hat{\mathbf{e}}_\rho \times \mathbf{p}) \times \hat{\mathbf{e}}_\rho + [3\hat{\mathbf{e}}_\rho(\hat{\mathbf{e}}_\rho \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}]\left(\frac{1}{\rho^2} - \frac{ik}{\rho}\right)\right\} \\ \mathbf{H} &= \frac{ck^2}{4\pi}(\hat{\mathbf{e}}_\rho \times \mathbf{p})\frac{e^{ik\rho}}{\rho}\left(1 - \frac{1}{ik\rho}\right) \end{aligned} \tag{II.32}$$

Dipôle magnétique On appelle dipôle magnétique une boucle de courant de surface S parcourue par un courant d'intensité I. Le moment dipolaire magnétique $\mathbf{m}$ d'un tel dipôle, représenté sur la FIGURE II.5, est orienté suivant la normale $\hat{\mathbf{n}}$ à S et sa valeur est proportionnelle à l'intensité du courant dans la boucle : $\mathbf{m} = S \cdot I \cdot \hat{\mathbf{n}}$. Son nom provient du fait que cette boucle de courant produit un champ magnétique

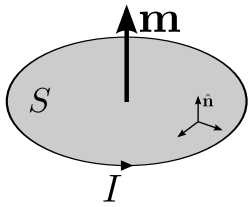

FIGURE II.5 – Dipôle magnétique.

équivalent au champ électrique produit par un dipôle électrique. Ces champs sont :

$$\begin{aligned} \mathbf{H} &= \frac{1}{4\pi}\frac{e^{ik\rho}}{\rho}\left\{k^2(\hat{\mathbf{e}}_\rho \times \mathbf{m}) \times \hat{\mathbf{e}}_\rho + [3\hat{\mathbf{e}}_\rho(\hat{\mathbf{e}}_\rho \cdot \mathbf{m}) - \mathbf{m}]\left(\frac{1}{\rho^2} - \frac{ik}{\rho}\right)\right\} \\ \mathbf{E} &= -\frac{Z_0}{4\pi}k^2(\hat{\mathbf{e}}_\rho \times \mathbf{m})\frac{e^{ik\rho}}{\rho}\left(1 - \frac{1}{ik\rho}\right) \end{aligned} \tag{II.33}$$

Polarisabilité À grande distance, de nombreux systèmes complexes peuvent être assimilés à des dipôles. Les atomes, formés d'un nuage électronique capable de se déformer autour d'un noyau positif, peuvent être considérés comme des dipôles électriques microscopiques. Il en est de même pour les molécules, comme la molécule d'eau. Sous l'action d'un champ électrique, le barycentre des charges positives et des charges négatives ne sont plus confondus et on peut leur associer un moment dipolaire électrique $\mathbf{p}$. La polarisabilité électrique α de la molécule est définie comme la relation entre $\mathbf{p}$ et le champ électrique local $\mathbf{E}_{\text{local}}$:

$$\mathbf{p} = \varepsilon_0 \alpha \mathbf{E}_{\text{local}} \tag{II.34}$$

On définit de la même manière la polarisabilité magnétique β comme la relation entre le moment dipolaire magnétique $\mathbf{m}$ et le champ magnétique local $\mathbf{H}_{\text{local}}$:

$$\mathbf{m} = \mu_0 \beta \mathbf{H}_{\text{local}} \tag{II.35}$$

II.2.3 Théorie de Clausius-Mossotti

Cette théorie développée à la fin du XIX^{e} siècle [66, 67], permet d'établir une relation entre les paramètres macroscopiques ε et μ du matériau et les polarisabilités individuelles électriques α et magnétiques β des atomes ou molécules le constituant. Elle est valide pour des champs statiques et quasi-statiques. La démonstration qui va suivre est largement inspirée des références [68, 69], dans lesquelles le lecteur pourra trouver davantage de détails. La relation ne sera établie que pour le champ électrique, mais la symétrie des équations entre champ électrique et magnétique la rend tout aussi valide pour la perméabilité.

Nous considérons maintenant un cristal diélectrique en régime quasi-statique ($d \ll \frac{\lambda}{10}$). Sous l'action d'un champ électrique, chaque atome du matériau donne naissance à un dipôle électrique microscopique $\mathbf{p}$. Chacun de ces dipôles élémentaires est relié au champ local $\mathbf{E}_{\text{local}}$ par la polarisabilité α des atomes ou molécules :

$$\mathbf{p} = \varepsilon_0 \alpha \mathbf{E}_{\text{local}} \tag{II.36}$$

Du point de vue macroscopique, l'ensemble de ces dipôles donne lieu à la polarisation macroscopique du matériau. Le vecteur polarisation $\mathbf{P}$ est défini comme le moment dipolaire par unité de volume du matériau :

$$\mathbf{P} = \frac{1}{V} \sum_n \mathbf{p}_n$$

Pour un matériau homogène, un champ électrique uniforme génère une polarisation $\mathbf{P}$ uniforme et :

$$\mathbf{P} = N\mathbf{p}, \tag{II.37}$$

avec N le nombre d'atomes ou molécules par unité de volume.
La relation entre cette polarisation et les champs macroscopiques $\mathbf{E}$ et $\mathbf{D}$ est :

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$$

La susceptibilité électrique χ est définie comme la relation entre le champ électrique et le vecteur polarisation :

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi \mathbf{E} \tag{II.38}$$

On a alors

$$\mathbf{D} = (1+\chi)\varepsilon_0 \mathbf{E} = \varepsilon_r \varepsilon_0 \mathbf{E},$$

c'est-à-dire :

$$\varepsilon_r = (1+\chi) \tag{II.39}$$

En combinant les équations (II.38), (II.36) et (II.37), on obtient une relation entre la polarisabilité microscopique et la susceptibilité macroscopique :

$$\chi \mathbf{E} = N\alpha \mathbf{E}_{\text{local}} \tag{II.40}$$

Pour connaître l'expression de χ, il nous reste à expliciter la relation entre le champ local et le champ macroscopique. On définit dans ce but les champs $\mathbf{E}_0$, $\mathbf{E}_1$, $\mathbf{E}_2$ et $\mathbf{E}_3$ (cf. FIGURE II.6).
Sous l'action du champ appliqué $\mathbf{E}_0$ le matériau se polarise, donnant naissance au champ dépolarisant

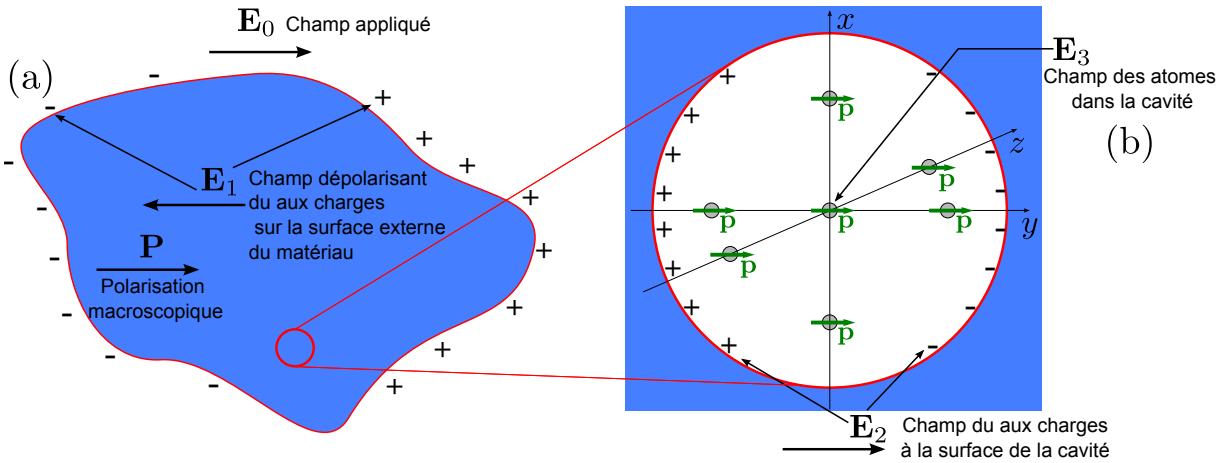

FIGURE II.6 – Définition des champs macro et microscopiques existant dans un matériau diélectrique cristallin soumis à un champ $\mathbf{E}_0$. (a) Matériau global. (b) Cavité sphèrique de Lorentz pour une maille cubique.

$\mathbf{E}_1$. Le champ macroscopique vaut donc :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_0$$

Au niveau microscopique, on peut considérer par la pensée que chaque atome situé loin des frontières du matériau fait partie d'une cavité sphérique telle que représentée sur la FIGURE II.6. Le champ local au niveau de l'atome considéré peut ainsi être décomposé comme la somme des deux champs précédents, plus le champ des parois de la cavité $\mathbf{E}_2$ et celui dû aux autres atomes de la cavité $\mathbf{E}_3$:

$$\mathbf{E}_{\text{local}} = \mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2 + \mathbf{E}_3 \tag{II.41}$$

Le champ de la cavité sphérique $\mathbf{E}_2$, aussi appelé champ de cavité de Lorentz, se calcule selon les méthodes classiques et, est égal à :

$$\mathbf{E}_2 = \frac{1}{3\varepsilon_0}\mathbf{P}$$

Le champ $\mathbf{E}_3$ est le seul qui dépende de la structure cristalline. Sur la FIGURE II.6, nous avons choisi de représenter le cas référence, le cas d'un réseau cubique. Pour ce type de réseau $\mathbf{E}_3 = \mathbf{0}$, car, par symétrie, les contributions de l'ensemble des atomes de la cavité s'annulent en son centre.
On trouve alors, pour un réseau cubique :

$$\mathbf{E}_{\text{local}} = \mathbf{E} + \mathbf{E}_2 = \mathbf{E} + \frac{1}{3\varepsilon_0}\mathbf{P}$$

En remplaçant $\mathbf{E}_{\text{local}}$ dans l'équation (II.40), on trouve :

$$\chi\mathbf{E} = N\alpha(\mathbf{E} + \frac{1}{3}\chi\mathbf{E}),$$

ce qui donne :

$$\chi = \frac{N\alpha}{(1-\frac{N\alpha}{3})} \quad \text{et} \quad \varepsilon_r = 1+\chi = \frac{3+2N\alpha}{(3-N\alpha)}$$

La permittivité du milieu macroscopique s'écrit ainsi :

$$\varepsilon = \varepsilon_0 \frac{3+2N\alpha}{3-N\alpha} \tag{II.42}$$

On peut appliquer exactement le même raisonnement à des dipôles magnétiques, et on trouve ainsi l'expression équivalente pour la perméabilité macroscopique μ d'un cristal :

$$\mu = \mu_0 \frac{3+2N\beta}{3-N\beta} \tag{II.43}$$

Il s'agit des formules de Clausius-Mossotti [66, 67] qui peuvent aussi s'exprimer sous ces formes :

$$\frac{\varepsilon-\varepsilon_0}{\varepsilon+2\varepsilon_0} = \frac{N\alpha}{3}, \qquad \frac{\mu-\mu_0}{\mu+2\mu_0} = \frac{N\beta}{3} \tag{II.44}$$

II.2.4 Théorie du milieu effectif : Maxwell Garnett

Les théories du milieu effectif sont des théories d'homogénéisation, permettant de déduire le comportement macroscopique moyen d'un matériau à partir d'une connaissance de sa réponse microscopique. Il existe plusieurs théories du milieu effectif, parmi lesquelles celle de Clausius-Mossotti que nous avons décrite au chapitre précédent. Pour des structures composites présentant des inhomogénéités à une échelle plus grande que l'atome ou la molécule, des modèles souvent utilisés sont ceux de Bruggeman [70] et de Maxwell Garnett [71]. La théorie de Bruggeman est une théorie du milieu effectif essentiellement utilisée pour décrire le comportement de milieux composites biphasiques (voir la FIGURE II.7), en traitant de manière symétrique les deux phases. La théorie de Maxwell Garnett quant à elle est utilisée pour décrire les milieux composites formé d'inclusions discrètes dans un milieu hôte ; ce modèle introduit par nature une asymétrie entre inclusions et milieu-hôte. Les milieux composites que nous étudierons dans la suite seront exclusivement composés de sphères dispersées dans une matrice-hôte, et, par conséquent, nous nous intéresserons uniquement à la théorie de Maxwell Garnett dans ce qui suit.

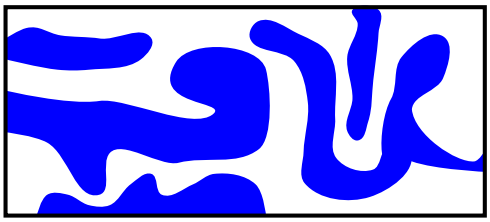

FIGURE II.7 – Exemple de milieu composite bi-phasique pouvant être décrit par la théorie de Bruggeman

II.2.4-a Principe de base

La théorie de Maxwell Garnett, ainsi que nous venons de le mentionner, cherche à exprimer les paramètres effectifs ε_{eff} et μ_{eff} décrivant le comportement macroscopique de milieux composites d'inclusions discrètes. Sur la FIGURE II.8 est représenté un milieu composé de sphères matérielles insérées dans un milieu-hôte pouvant être décrit par la théorie de Maxwell Garnett.

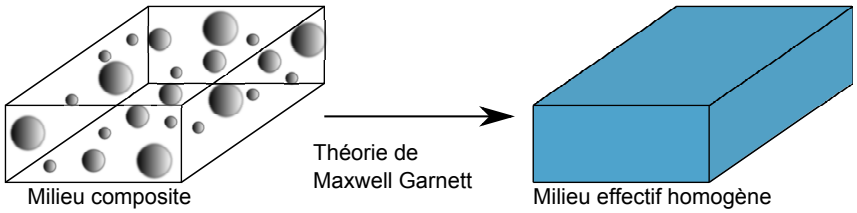

FIGURE II.8 – Exemple de milieu composite pouvant être décrit par la théorie de Maxwell Garnett

La théorie de Maxwell Garnett est basée sur une généralisation des formules de Clausius-Mossotti (II.42) et (II.43) :

$$\varepsilon_{\text{eff}} = \varepsilon_{\text{h}} \frac{3 + 2N\alpha_{\text{p}}}{3 - N\alpha_{\text{p}}}, \qquad \mu_{\text{eff}} = \mu_{\text{h}} \frac{3 + 2N\beta_{\text{p}}}{3 - N\beta_{\text{p}}} \tag{II.45}$$

où ε_{h} et μ_{h} sont les paramètres électromagnétiques du milieu-hôte et où, au lieu de considérer des polarisabilités atomiques ou moléculaires, on tient compte des polarisabilités dipolaires électriques et magnétiques α_{p} et β_{p} des particules dans la matrice. Cette homogénéisation de la réponse électromagnétique n'est strictement valide que pour des longueurs d'onde très supérieures au rayon des particules et pour des réseaux à symétrie cubique. Pour les autres réseaux, le champ $\mathbf{E}_3$ du paragraphe précédent est de manière générale différent de 0, et on doit alors le calculer numériquement pour obtenir l'expression du champ local. Dans le cas particulier d'une structure amorphe (désordonnée), $\mathbf{E}_3 = \mathbf{0}$ en moyenne, mais les fluctuations peuvent jouer un rôle important.
Selon l'expression qui sera prise pour α_{p} et β_{p}, on a affaire à la théorie classique ou étendue de Maxwell Garnett.

II.2.4-b Modèle de Maxwell Garnett classique

Dans cette version du modèle, on considère des sphères de rayons très petits devant la longueur d'onde dans le milieu-hôte $\lambda_{\text{h}} \gg r$, et on se place dans l'approximation quasi-statique (champ uniforme à l'échelle des inclusions) [72, 73]. On utilise par conséquent la polarisabilité sous champ quasi-statique de particules sphériques de rayon r, donnée par [64] :

$$\alpha_{\text{p}_{\text{quasi-statique}}} = 4\pi r^3 \frac{\varepsilon_{\text{p}} - \varepsilon_{\text{h}}}{\varepsilon_{\text{p}} + 2\varepsilon_{\text{h}}} \tag{II.46}$$

où ε_{p} et ε_{h} sont respectivement les permittivités des particules et de la matrice-hôte.
En remplaçant cette expression dans l'équation (II.45), on obtient après réarrangement, l'équation de Maxwell Garnett :

$$\varepsilon_{\text{eff}} = \varepsilon_{\text{h}} + 3f\varepsilon_{\text{h}} \frac{\varepsilon_{\text{p}} - \varepsilon_{\text{h}}}{\varepsilon_{\text{p}} + 2\varepsilon_{\text{h}} - f(\varepsilon_{\text{p}} - \varepsilon_{\text{h}})} \tag{II.47}$$

où $f = \frac{4}{3}\pi N r^3$ est la fraction volumique en particules.
La théorie classique de Maxwell Garnett a initialement été élaborée pour décrire la permittivité effective d'un milieu composite. Elle donne de bons résultats dans la description, par exemple, d'inclusions métalliques de petites tailles dispersées dans un milieu-hôte. Il existe dans l'approximation quasi-statique une formule analogue pour la perméabilité, que nous ne donnons pas ici, d'une part en raison de la complexité de l'expression de la polarisabilité statique magnétique, et d'autre part pour une raison physique :

sous champ quasi-statique ($\tau \to 0$), le coefficient dipolaire électrique est largement dominant sur le dipolaire magnétique et les effets magnétiques sont ainsi négligeables (cf. FIGURE II.2).
Il est à noter que cette théorie est très largement utilisée et ses limites et extension font l'objet de débats dans la communauté [74].

II.2.4-c Théorie de Maxwell Garnett étendue

Avec l'approche de Maxwell Garnett classique, les effets des résonances de Mie (notamment magnétique) des sphères diélectriques ne sont pas décrites. Pour les prendre en compte, il existe une extension de cette théorie, dans laquelle on n'utilise plus la polarisabilité sous champ statique mais la polarisabilité dynamique dérivée de la théorie de Mie [75, 73]. Le calcul de cette polarisabilité dynamique est expliqué ci-dessous.

Polarisabilité dynamique de Mie Afin de calculer la relation entre la polarisabilité et les coefficients dipolaires de Mie nous réutilisons ici le formalisme de la section II.1.
En régime quasi-statique ($\lambda_h \gg r$), on peut en bonne approximation, décrire les sphères comme des dipôles électriques et magnétiques. En ne retenant que le terme dipolaire ($n = 1$) dans le développement de Mie (II.17), les champs diffusés par les sphères sont :

$$\mathbf{E}_s = E_1(ia_1\mathbf{N}_{e11}^{(3)} - b_1\mathbf{M}_{o11}^{(3)}) \tag{II.48}$$

$$\mathbf{H}_s = \frac{k_h}{\omega\mu_h}E_1(ib_1\mathbf{N}_{o11}^{(3)} + a_1\mathbf{M}_{e11}^{(3)}) \tag{II.49}$$

où $E_1 = \frac{3}{2}iE_0$ et E_0 est l'amplitude de l'onde incidente.
Chacun de ces coefficients dipolaires de Mie b_1 et a_1 donne naissance à un champ électrique et magnétique que l'on peut séparer de la manière suivante :

$$\mathbf{E}_{b_1} = -\frac{3}{2}iE_0b_1\mathbf{M}_{o11}^{(3)} \qquad \mathbf{H}_{b_1} = -\frac{3}{2}H_0b_1\mathbf{N}_{o11}^{(3)} \tag{II.50}$$

$$\mathbf{E}_{a_1} = -\frac{3}{2}E_0a_1\mathbf{N}_{e11}^{(3)} \qquad \mathbf{H}_{a_1} = \frac{3}{2}iH_0a_1\mathbf{M}_{e11}^{(3)} \tag{II.51}$$

où $H_0 = \frac{k_hE_0}{\omega\mu_h}$.
L'idée est ensuite de comparer ces champs aux expressions des champs des dipôles électriques (II.32) et magnétiques (II.33), ce qui permettra d'exprimer la polarisabilité des sphères en fonction des coefficients dipolaires de Mie, a_1 et b_1. Pour cela, développons l'expression du champ magnétique $\mathbf{H}_{b_1}$ dû au terme b_1.
L'expression du vecteur $\mathbf{N}_{o11}^{(3)}$, en coordonnées sphériques est donnée dans [64] :

$$\mathbf{N}_{o11}^{(3)} = 2\sin\phi\sin\theta\cdot\pi_1(\cos\theta)\frac{h_1(k_h\rho)}{k_h\rho}\hat{\mathbf{e}}_\rho + \left(\hat{\mathbf{e}}_\theta\sin\phi\cdot\tau_1(\cos\theta) + \hat{\mathbf{e}}_\phi\cos\phi\cdot\pi_1(\cos\theta)\right)\frac{[k_h\rho\cdot h_1(k_h\rho)]'}{k_h\rho} \tag{II.52}$$

avec $\pi_1(\cos\theta) = \dfrac{P_n^1(\cos\theta)}{\sin\theta} = 1$ et $\tau_1(\cos\theta) = \dfrac{\mathrm{d}P_n^1(\cos\theta)}{\mathrm{d}\theta} = \cos\theta$.
On en déduit l'expression du champ $\mathbf{H}_{b_1}$:

$$\mathbf{H}_{b_1} = -\frac{3}{2} H_0 b_1 \left\{ 2\sin\phi\sin\theta \frac{h_1(k_\mathrm{h}\rho)}{k_\mathrm{h}\rho}\hat{\mathbf{e}}_\rho + \left(\hat{\mathbf{e}}_\theta \sin\phi\cos\theta + \hat{\mathbf{e}}_\phi\cos\phi\right) \frac{[k_\mathrm{h}\rho \cdot h_1(k_\mathrm{h}\rho)]'}{k_\mathrm{h}\rho} \right\} \tag{II.53}$$

qui peut être mise sous la forme [49] :

$$\mathbf{H}_{b_1} = \frac{3}{2}\frac{iH_0 b_1}{k_\mathrm{h}^3}\frac{\mathrm{e}^{ik_\mathrm{h}\rho}}{\rho}\left\{ k_\mathrm{h}^2(\hat{\mathbf{e}}_\rho \times \hat{\mathbf{e}}_y)\times\hat{\mathbf{e}}_\rho + [3\hat{\mathbf{e}}_\rho(\hat{\mathbf{e}}_\rho\cdot\hat{\mathbf{e}}_y) - \hat{\mathbf{e}}_y]\left(\frac{1}{\rho^2} - \frac{ik_\mathrm{h}}{\rho}\right)\right\} \tag{II.54}$$

On peut identifier à l'expression classique de rayonnement magnétique dipolaire (II.33) :

$$\mathbf{H}_{\text{dipolaire}} = \frac{1}{4\pi}\frac{\mathrm{e}^{ik_\mathrm{h}\rho}}{\rho}\left\{ k_\mathrm{h}^2(\hat{\mathbf{e}}_\rho \times \mathbf{m})\times\hat{\mathbf{e}}_\rho + [3\hat{\mathbf{e}}_\rho(\hat{\mathbf{e}}_\rho\cdot\mathbf{m}) - \mathbf{m}]\left(\frac{1}{\rho^2} - \frac{ik_\mathrm{h}}{\rho}\right)\right\}, \tag{II.55}$$

ce qui permet de retrouver la valeur du moment dipolaire magnétique de la sphère $\mathbf{m} = \beta_\mathrm{p}\,\mathbf{H}_i|_{\rho=0} = \beta_\mathrm{p} H_0 \hat{\mathbf{e}}_y$, et donne l'égalité suivante :

$$\frac{\beta_\mathrm{p} H_0}{4\pi} = \frac{3}{2}\frac{iH_0 b_1}{k_\mathrm{h}^3}. \tag{II.56}$$

On en déduit ainsi la valeur de polarisabilité magnétique de la sphère, issue de la théorie dynamique de Mie, en fonction du coefficient dipolaire magnétique :

$$\beta_\mathrm{p} = 6\pi i b_1 \frac{1}{k_\mathrm{h}^3} \tag{II.57}$$

On peut mener le même calcul pour le coefficient dipolaire électrique a_1, on obtient alors la relation équivalente :

$$\alpha_\mathrm{p} = 6\pi i a_1 \frac{1}{k_\mathrm{h}^3} \tag{II.58}$$

Expression de Maxwell Garnett étendue Les polarisabilités quasi-statique (II.57) et (II.58) peuvent être récrites en fonction du paramètre de Mie $\tau = \dfrac{2\pi r\sqrt{\varepsilon_\mathrm{h}\mu_\mathrm{h}}}{\lambda_0}$ défini dans l'équation (II.22) :

$$\alpha_\mathrm{p} = 6\pi i a_1 \frac{r^3}{\tau^3}, \qquad \beta_\mathrm{p} = 6\pi i b_1 \frac{r^3}{\tau^3} \tag{II.59}$$

En substituant dans la formule de Clausius-Mossotti (II.45), on obtient les paramètres effectifs du milieu composite selon la théorie de Maxwell Garnett étendue :

$$\varepsilon_\text{eff} = \varepsilon_\mathrm{h}\frac{\tau^3 + 3if a_1}{\tau^3 - \frac{3}{2}if a_1}, \qquad \mu_\text{eff} = \mu_\mathrm{h}\frac{\tau^3 + 3if b_1}{\tau^3 - \frac{3}{2}if b_1} \tag{II.60}$$

Nous verrons dans la partie suivante que les résonances des coefficients de Mie a_1 et b_1, induiront des résonances de ces paramètres effectifs.

On peut enfin remarquer que la formule de Maxwell Garnett classique découle de la formule étendue. En effet, quand $\tau \ll 1$, on peut considérer le terme en τ^3 de l'expression (II.26) comme une bonne

approximation de a_1 :

$$a_1 = -\frac{i2\tau^3}{3}\frac{m^2-1}{m^2+2} + O(\tau^3)$$

En remplaçant cette expression de a_1 dans l'équation (II.60), on retrouve l'expression de Maxwell Garnett classique (II.47).

II.2.4-d Discussion sur les limites de validité de la théorie de Maxwell Garnett

Correction radiative L'expression de la polarisabilité (II.46) est exacte seulement en régime statique ($\nu \to 0$) et perd sa validité à fréquence non nulle. On peut facilement comprendre pourquoi en considérant des particules sans perte (ε_p réel), pour lesquelles la polarisabilité donnée par (II.46) est également réelle. Pourtant, on sait que pour des fréquences finies, un dipôle éclairé par une onde plane diffuse une partie de l'énergie incidente et donc atténue l'onde plane, ce qui doit se traduire par une partie imaginaire dans l'expression de la polarisabilité [76]. La polarisabilité statique donnée par l'expression (II.46) contredit donc le principe de conservation de l'énergie [77]. Ce problème peut être corrigé en modifiant légèrement l'équation (II.46) de la manière suivante :

$$\alpha_{p_{\text{statique}}} = 4\pi r^3 \left(\frac{\varepsilon_p + 2\varepsilon_h}{\varepsilon_p - \varepsilon_h} - i\frac{2\tau^3}{3} \right)^{-1}, \tag{II.61}$$

où le second terme caractérise la relaxation par radiation des sphères ; cette correction est connue sous le nom de correction radiative. Pour des fréquences nulles, on retrouve l'expression originale (II.46).
Lorsque l'on utilise la polarisabilité dynamique (II.59) dépendant des coefficients dipolaires de Mie :

$$\alpha_p = 6\pi i a_1 \frac{r^3}{\tau^3}, \qquad \beta_p = 6\pi i b_1 \frac{r^3}{\tau^3} \tag{II.62}$$

et que l'on réalise un développement limité de α_p^{-1} pour τ petit, on obtient :

$$\alpha_p \approx 4\pi r^3 \left[\frac{m^2+2}{m^2-1} - \frac{3}{5}\frac{m^2-2}{m^2-1}\tau^2 - i\frac{2\tau^3}{3} + O(\tau^4) \right]^{-1}, \tag{II.63}$$

et on remarque que le troisième terme à l'intérieur du crochet correspond à la correction radiative pour la polarisabilité statique. Ce terme est aussi présent lorsque l'on développe de la même manière β_p. On se rend ainsi compte que l'expression de la polarisabilité (II.59) ne nécessite aucune correction pour satisfaire la conservation de l'énergie [77].

Suppression de la correction radiative pour les réseaux périodiques Pour les réseaux périodiques, il a été démontré dans [78], qu'en considérant que les particules interagissent entre elles seulement via l'interaction dipôle-dipôle retardée, les pertes radiatives globales dans la structure s'annulent. En effet, les pertes radiatives individuelles au niveau d'une particule sont exactement compensées par le rayonnement reçu des autres particules du réseau par effets d'interférence du champ d'interaction entre particules [79]. Ainsi, lorsqu'on place une particule dans un réseau, il faut donc *éliminer* le terme radiatif dans l'expression de la polarisabilité en l'ajoutant de manière *ad hoc* :

$$\alpha^{-1} + i\frac{k_h^3}{6\pi} \tag{II.64}$$

où α est soit (II.61), soit (II.59).
En utilisant cette suppression des pertes radiatives pour les réseaux périodiques, la relation de Maxwell étendue devient :

$$\varepsilon_{\text{eff}} = \varepsilon_{\text{h}} \frac{1 - a_1 + \dfrac{3if a_1}{\tau^3}}{1 - a_1 - \dfrac{3if a_1}{2\tau^3}}, \qquad \mu_{\text{eff}} = \mu_{\text{h}} \frac{1 - b_1 + \dfrac{3if b_1}{\tau^3}}{1 - b_1 - \dfrac{3if b_1}{2\tau^3}} \tag{II.65}$$

Domaine de validité et extensions Dans ce qui précède, nous avons dit que les limites de validité de la théorie de Maxwell Garnett, sont les mêmes que celles de la théorie de Clausius Mossotti :

- Elle est valable en régime quasi-statique, c'est-à-dire pour des longueurs λ_{h} d'onde très supérieure aux rayons des particules et aux distances d entre particules (avec pour limite supérieure $d < \dfrac{\lambda_{\text{h}}}{10}$).
- Les distances d entre particules doivent être grande par rapport aux rayons r des particules pour pouvoir négliger les interactions multipolaires entre particules (typiquement $r \leq d/3$) [80]. Cette hypothèse est équivalente à l'hypothèse d'un régime de faible dilution.
- Enfin, elle reste valable tant que les contributions des plus proches voisins (champ $\mathbf{E}_3$ dans (II.41)) s'annulent (comme c'est le cas pour un réseau cubique) ou, de manière équivalente, quand on peut négliger les couplages entre particules.

Une discussion très intéressante sur cette dernière hypothèse est faite par Mallet et al. dans [81]. Dans cette publication, les auteurs démontrent que la théorie de Maxwell Garnett reste valide pour des systèmes désordonnés, y compris en présence de multidiffusion, lorsque les positions des particules sont non-corrélées entre elles (ou plus exactement, quasiment non-corrélées, puisque pour des sphères dures, la condition de non-pénétration entraîne de fait une certaine corrélation de position). De plus, ces auteurs montrent que ce résultat pour les milieux désordonnés reste valide pour des fractions volumiques relativement haute (jusqu'à environ $f = 20\%$).
Parmi les nombreuses extensions de cette théorie, on peut aussi citer [82, 83] où les auteurs incluent les interactions multipolaires pour pouvoir décrire des systèmes dans lesquels les distances entre particules sont petites.

II.2.4-e Formulation alternative de Lewin

Une formulation approchée de la théorie de Maxwell Garnett a été développée par Lewin en 1947 dans [41]. Dans cette publication, Lewin propose une approximation des coefficients dipolaires de Mie autour des résonances dipolaires d'ordre le plus bas.
Comme nous l'avons signalé à la section II.1.3-b, les développements limités des coefficients dipolaires de Mie pour τ petit (équations (II.26) à (II.29)), ne rendent pas compte de ces résonances dipolaires puisqu'on n'observe aucune singularité de a_1 ou b_1 (pour $\text{Re}(m) > 0$). Il faut donc une approximation plus fine compatible avec le fait que ces résonances apparaissent pour $\text{Re}(m)$ grand. Les coefficients dipolaires exacts a_1 et b_1, en utilisant (II.20) (II.21) et (II.25), peuvent être écrits sous cette forme :

$$a_1 = \frac{\dfrac{\varepsilon_{\text{p}}}{\varepsilon_{\text{h}}}\psi_1(m\tau)\psi_1'(\tau) - m\psi_1(\tau)\psi_1'(m\tau)}{\dfrac{\varepsilon_{\text{p}}}{\varepsilon_{\text{h}}}\psi_1(m\tau)\xi_1'(\tau) - m\xi_1(\tau)\psi_1'(m\tau)} \tag{II.66}$$

$$b_1 = \frac{\mu_{\text{p}}\psi_1(m\tau)\psi_1'(\tau) - \mu_{\text{h}} m\psi_1(\tau)\psi_1'(m\tau)}{\mu_{\text{p}}\psi_1(m\tau)\xi_1'(\tau) - \mu_{\text{h}} m\xi_1(\tau)\psi_1'(m\tau)} \tag{II.67}$$

Autour des résonances comme illustré par la FIGURE II.2, $\tau \ll 1$ mais $\mathrm{Re}(m\tau) \sim 1$. Ainsi, Lewin a eu l'idée de garder l'expression exacte des termes en $m\tau$ et de réaliser un développement limité des termes en τ seulement. Les expression approchées des termes en τ sont les suivantes :

$$\psi_1(\tau) = \frac{1}{3}\tau^2 + O(\tau^3) \quad \psi_1'(\tau) = \frac{2}{3}\tau + O(\tau^3) \quad \xi_1(\tau) = -\frac{i}{\tau} + O(\tau) \quad \xi_1'(\tau) = \frac{i}{\tau^2} + O(1) \tag{II.68}$$

Les expressions exactes des termes $\psi_1(m\tau)$ et $\psi_1'(m\tau)$ sont :

$$\psi_1(m\tau) = \frac{\sin(m\tau)}{m\tau} - \cos(m\tau) \tag{II.69}$$

$$\psi_1'(m\tau) = \sin(m\tau) + \frac{\cos(m\tau)}{m\tau} - \frac{\sin(m\tau)}{(m\tau)^2} \tag{II.70}$$

En utilisant ces expressions dans (II.66) et (II.67), on obtient alors de nouvelles expressions approchées des coefficients de Mie :

$$a_1 = i\frac{2}{3}\tau^3 \frac{\varepsilon_\mathrm{h} - \varepsilon_\mathrm{p} F(m\tau)}{2\varepsilon_\mathrm{h} + \varepsilon_\mathrm{p} F(m\tau)}, \qquad b_1 = i\frac{2}{3}\tau^3 \frac{\mu_\mathrm{h} - \mu_\mathrm{p} F(m\tau)}{2\mu_\mathrm{h} + \mu_\mathrm{p} F(m\tau)} \tag{II.71}$$

où : $F(u) = \dfrac{2\left[\sin(u) - u\cos(u)\right]}{(u^2-1)\sin(u) + u\cos(u)}$ est la fonction de Lewin.

Et, en utilisant l'équation (II.60), on obtient une nouvelle formulation approchée de la formule de Maxwell Garnett :

$$\varepsilon_\mathrm{eff} = \varepsilon_\mathrm{h} \frac{1 - 2f\dfrac{\varepsilon_\mathrm{h} - \varepsilon_\mathrm{p} F(m\tau)}{2\varepsilon_\mathrm{h} + \varepsilon_\mathrm{p} F(m\tau)}}{1 + f\dfrac{\varepsilon_\mathrm{h} - \varepsilon_\mathrm{p} F(m\tau)}{2\varepsilon_\mathrm{h} + \varepsilon_\mathrm{p} F(m\tau)}} \quad \text{et} \quad \mu_\mathrm{eff} = \mu_\mathrm{h} \frac{1 - 2f\dfrac{\mu_\mathrm{h} - \mu_\mathrm{p} F(m\tau)}{2\mu_\mathrm{h} + \mu_\mathrm{p} F(m\tau)}}{1 + f\dfrac{\mu_\mathrm{h} - \mu_\mathrm{p} F(m\tau)}{2\mu_\mathrm{h} + \mu_\mathrm{p} F(m\tau)}} \tag{II.72}$$

Dans la suite, on se référera à cette approximation sous le nom d'approximation de Lewin.
Ce calcul approché à l'avantage de simplifier les coefficients dipolaires de Mie et ainsi de pouvoir calculer l'expression de Maxwell Garnett en limitant les ressources utilisées par l'ordinateur. Les positions des résonances sont prédites de manière correcte comme on peut voir sur la FIGURE II.9, mais une des contreparties quand on utilise ces expressions, est le manque de précision sur les amplitudes à la résonance.

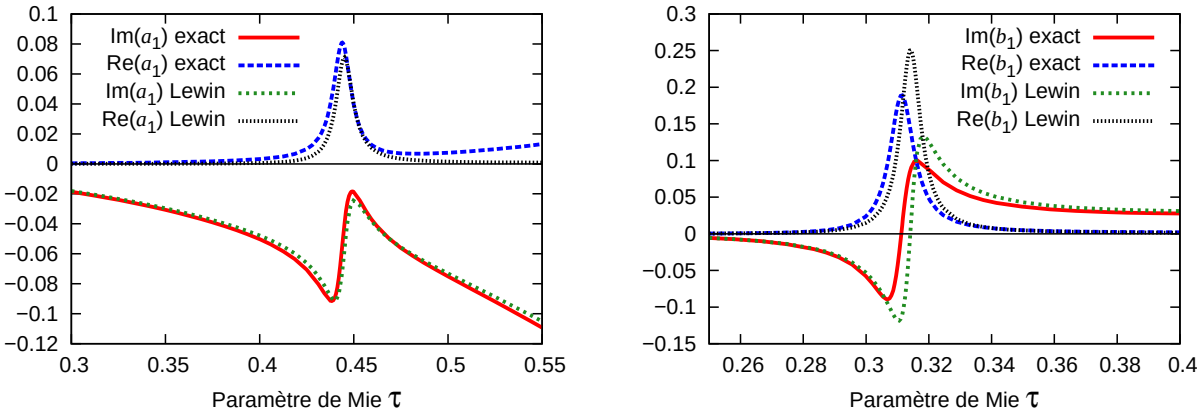

FIGURE II.9 – Comparaison des coefficients dipolaires exacts (théorie de Mie) et issus de l'approximation de Lewin.

Notons qu'il est possible, pour améliorer la précision de l'approximation de pousser plus loin l'ordre des développements limités (II.68).

II.3 Simulation numérique de métamatériaux par la méthode des éléments finis

Jusqu'à présent nous avons explicité les outils analytiques destiné à modéliser nos métamatériaux. Ces théories ont toutes leurs limites et afin de déterminer leurs domaines de validité, nous avons aussi étudié nos systèmes par des méthodes numériques. Pour cela, nous avons utilisé le logiciel commercial d'éléments finis de la société Ansys HFSS® (http://www.ansoft.com/products/hf/hfss/).
Ces simulations numériques sont très largement utilisées dans la communauté des métamatériaux puisqu'elles font office d'expérience virtuelle en approximant numériquement la solution physique des équations de Maxwell. Ainsi, des effets physiques souvent ignorés dans les méthodes analytiques (tel que l'effet du champ proche ou des moments multipolaires d'ordres élevés) sont présents dans ce type de calcul numérique.
Dans cette partie, nous expliquerons tout d'abord la méthode des éléments finis et comment nous l'avons utilisée avec le logiciel HFSS®. Nous aborderons ensuite les différentes méthodes d'extraction des paramètres effectifs des structures étudiées (permittivité, perméabilité, etc ...) et les problèmes qui en découlent.

II.3.1 La méthode des éléments finis

II.3.1-a Caractéristiques principales des éléments finis et comparaison avec les autres méthodes disponibles

Les méthodes numériques les plus connues et les plus utilisées en électromagnétisme, plus particulièrement dans le domaine des métamatériaux, sont la méthode des différences finies temporelles (FDTD), la méthode des éléments finis (FEM). Bien que ces deux méthodes permettent de résoudre des équations différentielles numériquement (dans notre cas les équations de Maxwell), il existe d'importantes différences entre elles, chacune avec ses points forts et ses points faibles.
La FDTD est une méthode développée par Kane Yee en 1966, et basée sur la discrétisation des opérateurs différentiels par la méthode des différence finies. C'est une méthode temporelle, ce qui permet en utilisant comme source une impulsion large bande, de couvrir à partir d'une seule simulation un grand domaine spectral. Cela permet aussi d'observer l'évolution temporelle des champs (notamment le régime transitoire) et donc d'avoir une bonne intuition de ce qui se passe dans la structure [84].
La FEM est une méthode fréquentielle, qui donne seulement accès à la solution en régime stationnaire à une fréquence donnée. Ainsi, pour obtenir le résultat sur une large bande fréquentielle, il est nécessaire de résoudre les équations pour chaque fréquence. Il en résulte des temps de simulation supérieurs à ceux de la FDTD mais une précision sur les fréquences de résonances supérieure. La FEM possédait aussi l'avantage sur la FDTD d'utiliser un maillage non-uniforme qui permet de donner plus de détails sur les régions d'intérêt (notamment pour des géométries complexes), mais maintenant, les dernières version de la plupart des logiciels FDTD permettent de créer de tels maillages. Ces différences font que de manière générale la FDTD est très économe en ressources informatiques alors que la FEM nécessite une puissance de calcul relativement élevée, notamment pour les structures complexes.
Dans la suite, nous nous intéresserons principalement aux résonances de Mie de sphères diélectriques en régime stationnaire ; nous avons ainsi choisi d'utiliser la FEM comme méthode de simulation pour comparer avec les résultats des calculs analytiques.

II.3.1-b Principe de la méthode

La méthode des éléments finis est une méthode généraliste de résolution d'Equations aux Dérivées Partielles (EDP). C'est une méthode populaire, initialement développée dans les années 1940 pour des problèmes de mécanique des structures, qui a ensuite été utilisée dans de nombreux domaines de la physique et de l'ingénierie, notamment en électromagnétisme. Cette méthode résout numériquement les équations aux dérivées partielles avec des conditions aux limites. Cette résolution numérique approchée est obtenue en discrétisant la géométrie du problème en plusieurs sous-domaines dont l'ensemble est appelé maillage (Voir FIGURE II.10). Plus le maillage est fin, plus l'approximation de la solution sera bonne. Pour des systèmes à deux dimensions, les éléments de base du maillage seront des triangles ; à 3 dimensions, ce seront des tétraèdres. De tels éléments géométriques ont la capacité de pouvoir s'adapter à n'importe quelle géométrie, notamment les structures courbes.

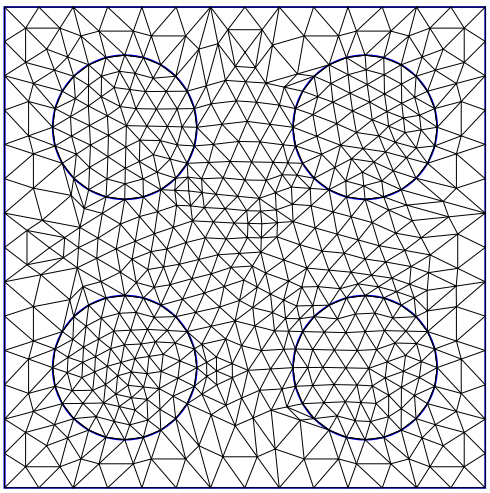

FIGURE II.10 – Maillage bidimensionnel d'une structure comportant des sphères.

De manière générale, la méthode de résolution est basée sur la formulation variationnelle et les résidus pondérés. Afin de comprendre intuitivement la méthode, nous nous limiterons à l'expliquer pour un système à une dimension, dans lequel le domaine géométrique est simplement un intervalle $[a,b]$. Des descriptions détaillées de la généralisation à 3 dimensions sont disponibles dans les références [85, 86].

On considère un système décrit par l'équation différentielle :

$$L[u(x)] = f(x) \tag{II.73}$$

avec L un opérateur différentiel linéaire (correspondant dans notre cas aux équations de Maxwell), f une fonction, u une solution exacte du problème et x la variable. Pour que le problème soit complet, on considère les conditions aux limites $u(a)$ et $u(b)$ connues.
On cherche une solution approchée $\tilde{u}(x)$ de la fonction $u(x)$, sous la forme d'une combinaison linéaire de fonctions φ_i, linéairement indépendantes et formant une base :

$$\tilde{u}(x) = \sum_{i=1}^{N} c_i \varphi_i(x) \tag{II.74}$$

Les φ_i, appelées fonctions d'interpolation, sont la plupart du temps des polynômes de degré variable. Les c_i sont les coefficients de pondérations à déterminer pour obtenir la solution approchée.
En substituant la solution approchée dans l'équation différentielle, le résultat n'est plus égal à f et il existe un résidu r :

$$L[\tilde{u}] - f = r(\tilde{u}) \neq 0 \tag{II.75}$$

On peut cependant évaluer la meilleure approximation possible de u en utilisant la méthode des résidus pondérés. Cette méthode consiste à minimiser le résidu [1] sur le domaine de définition. Pour cela, on construit l'intégrale R_j du produit du résidu r par une fonction de pondération w_j, et on écrit :

$$\forall j, \quad R_j = 0 = \int_a^b r[\tilde{u}(x)] w_j(x) dx \tag{II.76}$$

Pour la fonction exacte $u(x)$, cette égalité est vraie quelles que soient les fonctions de pondération w_j car l'intégrand s'annule pour tout x. Pour la fonction approchée $\tilde{u}(x)$ et pour un type de fonction de pondération w_j donnée, cette intégrale s'annule seulement lorsque le résidu est minimum (on peut le comprendre intuitivement avec la méthode des moindres carrés expliquée ci-dessous).
À partir de cette intégrale, on peut écrire pour la solution approchée l'expression :

$$\sum_{i=1}^{N} \int_a^b (L[c_i \varphi_i(x)] - f(x)) w_j(x) dx = 0 \tag{II.77}$$

qui donne un système matriciel dont les coefficients c_i sont les inconnues. Pour résoudre un tel système, on a besoin d'autant d'équations que d'inconnues et on doit donc choisir un nombre N de fonctions de pondération. La solution (c'est-à-dire l'ensemble des $\{c_i\}$) est finalement obtenue en inversant la matrice obtenue par des méthodes spécifiques.

Nous allons expliciter maintenant deux types de fonctions de pondération utilisées dans la méthode des résidus pondérés.

Méthode des moindres carrés Cette méthode permet de comprendre de manière intuitive la méthode des résidus pondérés.
Pour obtenir la meilleure approximation possible de u, on veut un résidu qui tende vers 0 sur le domaine de définition $[a,b]$. Pour cela, on cherche à minimiser la somme continue du carré du résidu de (II.75) :

$$\frac{1}{2} \int_a^b r^2[\tilde{u}(x)] dx \tag{II.78}$$

Le minimum d'une telle fonction est obtenu en écrivant que les dérivées par rapport aux coefficients c_i sont toutes nulles :

$$\forall i, \quad \int_a^b r \cdot \frac{\partial r}{\partial c_i} dx = 0 \tag{II.79}$$

En examinant cette expression, on constate qu'elle est équivalente à l'équation (II.76) avec :

$$w_i = \frac{\partial r}{\partial c_i} \tag{II.80}$$

1. en réalité il s'agit d'une moyenne pondérée du résidu.

Dans la méthode des moindres carrés, les fonctions de pondération sont les dérivées du résidu par rapport aux c_i.

Méthode de Galerkin Cette méthode mise au point par le mathématicien russe Galerkin utilise comme fonction de poids les fonctions de bases φ_i :

$$w_i = \varphi_i \tag{II.81}$$

La justification mathématique d'un tel choix est que les fonctions de pondération w_i sont orthogonales aux résidus sur le domaine de définition.
La méthode de Galerkin peut être aussi vue comme une extension de la méthode des moindres carrés. Plutôt que de prendre la dérivée du résidu par rapport à c_i, la dérivée de la fonction approchée $\tilde{u}$ est utilisée :

$$w_i = \frac{\partial \tilde{u}}{\partial c_i} = \varphi_i \tag{II.82}$$

II.3.2 Le logiciel HFSS®

Il existe une grande variété de codes d'éléments finis, mais on peut en distinguer deux catégories, les codes généralistes et les codes spécialisés. Les premiers permettent de résoudre n'importe quel système d'EDP mais ne sont pas optimisés au point de vue des ressources informatiques mises en jeu. Les codes spécialisés permettent, quant à eux, de résoudre de manière optimisée les EDP d'un système particulier : dans notre cas, nous utilisons le code spécialisé HFSS®.
HFSS, abréviation de « High Frequency Structure Simulator », est un logiciel commercial d'éléments finis de la société Ansys. L'équation différentielle (II.73) résolu par son code d'éléments finis est l'équation d'onde suivante :

$$\nabla \times [\mu_r^{-1} \nabla \times \mathbf{E}] - k_0^2 \varepsilon_r \mathbf{E} = 0 \tag{II.83}$$

Il s'agit d'un code fréquentiel car cette équation doit être résolue pour chaque valeur de $k_0 = 2\pi\nu/c$, directement reliée à la valeur de la fréquence ν. Ce code est tridimensionnel et produit un maillage tétraédrique adaptatif. La résolution par éléments finis de ces structures, associée à un calculateur intégré permet la visualisation des différents champs et grandeurs physiques.

La plupart des structures simulées dans la suite de ce manuscrit, seront des systèmes infinis dans deux directions de l'espace d'arrangements cristallins de sphères diélectriques, immergées dans un milieu-hôte, et, excités par une onde plane (voir FIGURE II.11). La simulation de structures infinies est rendue possible grâce à l'utilisation de conditions aux limites « perfect E » et « perfect H » proposées par HFSS® sur les surfaces de la cellule unitaire, dans les directions x et y. Ces conditions miment respectivement des conducteurs électriques et magnétiques parfaits, et par conséquent les champs $\mathbf{E}$ et $\mathbf{H}$ sont respectivement normaux a ces plans. On peut d'autre part exploiter les symétries au sein de la cellule unitaire du cristal : en effet, on sait d'après les lois de l'électrostatique et de la magnétostatique, que le champ $\mathbf{E}$ est normal à tout plan d'antisymétrie électrique et tout champ $\mathbf{H}$ est normal aux plans de symétrie magnétique. En plaçant donc les conditions aux limites « perfect E » et « perfect H » de manière appropriée sur les plans de symétries et d'antisymétrie de la cellule unitaire, on peut ainsi à la fois simuler la périodicité du réseau et réduire la taille de la région simulée. Nous avons la plupart du temps utilisé le mode « wave-port ex-

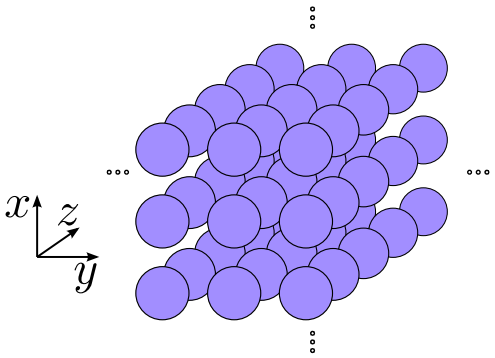

FIGURE II.11 – Structure cristalline infinie selon les direction x et y et comportant 5 couches de particules selon la direction de propagation z.

citation » qui permet d'exciter la structure, ainsi que de déterminer sa transmission et sa réflexion [87]. Ce mode d'excitation simule un guide d'onde semi-infini, dont la section transversale est celle délimitée par la surface dessinée, faisant office de source ou de récepteur de la structure tri-dimensionnelle. Cependant, les guides d'ondes ne sont pas TEM, et il nous faut donc, pour rendre l'onde plane en entrée, choisir de manière appropriée les conditions aux limites en contact avec le « wave-port » (perfect E, perfect H) (FIGURE II.12). Dans cette configuration, l'onde plane entre avec une incidence normale sur la structure ; il n'est pas possible de changer l'angle d'incidence, car les conditions aux limites employées ne seraient alors plus valides.

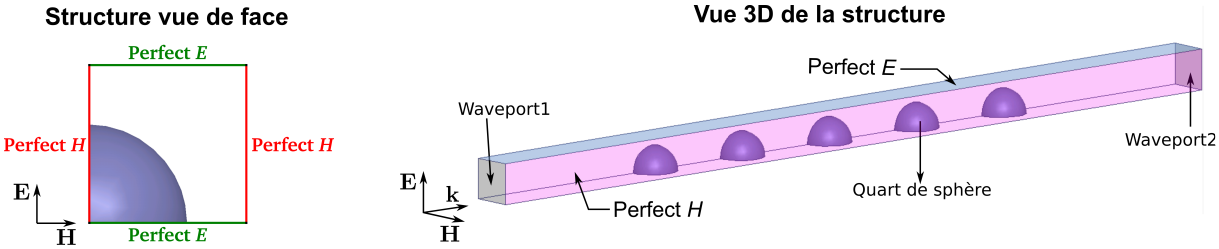

FIGURE II.12 – Géométrie et conditions aux limites utilisées dans HFSS® pour simuler la structure de la FIGURE II.11 avec une incidence normale.

II.3.3 Extraction des paramètres effectifs

Dans nos travaux, nous nous intéressons tout particulièrement aux paramètres effectifs des structures étudiées (indice, perméabilité, permittivité, etc.). Ces paramètres effectifs doivent être extraits à partir des coefficients de réflexion et transmission complexes de la lame de matériau composite simulée avec HFSS®. Avec le mode d'excitation en incidence normale expliqué ci-dessus, ces coefficients de réflexion et transmission se présentent sous la forme de paramètres S, avec S_{11} le coefficient de réflexion et S_{21} le coefficient de transmission :

$$S_{11} = M_{11}\mathrm{e}^{-i\phi_{11}}, \qquad S_{21} = M_{21}\mathrm{e}^{-i\phi_{21}} \tag{II.84}$$

où $M_{11}, M_{21}, \phi_{11}, \phi_{21}$ sont respectivement les modules et les phases de la réflexion et de la transmission. La procédure classique pour effectuer l'extraction des paramètres effectifs à partir des coefficients de réflexion et transmission, est connue sous le nom de méthode de Nicolson-Ross-Weir (NRW) [88, 89]. Elle fut utilisée dans le cadre des métamatériaux pour la première fois dans [90] et, à ce jour, c'est de

loin la procédure la plus utilisée pour l'extraction des paramètres effectifs de milieux composites.
Cependant, dans de nombreux cas, la méthode de NRW mène à des résultats partiellement erronés, notamment des violations des principes fondamentaux de la physique sur certaines gammes de fréquence [91]. Pour pallier à ces erreurs, il existe des extensions de la méthode de NRW [92], ainsi que des méthodes d'extraction alternatives [93, 91]. Dans ce qui suit, nous expliquerons le principe de la méthode NRW ainsi que ses limites. Nous verrons ensuite, une seconde méthode d'extraction due à Scher et Kuester.

II.3.3-a Extraction par la méthode de Nicolson-Ross-Weir

Principe de la méthode La méthode de Nicolson-Ross-Weir (NRW) est basée sur l'inversion des formules de Fresnel des coefficients de réflexion et transmission en onde plane pour des couches de milieux continus, et permet ainsi d'extraire l'indice n_{eff} et l'impédance z_{eff} d'un milieu composite à partir d'une simulation ou d'une expérience [88, 89]. Elle n'est valide qu'en incidence normale. Cette méthode a été appliquée en premier dans le contexte des métamatériaux par Smith et al. [90]. Sa validité est soumise aux conditions suivantes : pour pouvoir assigner un indice à un matériau, il faut qu'un seul mode propagatif existe dans celui-ci à la fréquence considérée. Comme nous l'avons déjà vu dans la section II.2, dans le cas de l'étude de milieux non-continus, l'existence, et donc l'extraction de paramètres effectifs, n'est possible que dans le cas où la longueur d'onde incidente est très supérieure aux tailles et aux distances entre les constituants élémentaires du milieu composite.
La méthode NRW est simplement basée sur le calcul classique d'interférence donnant la transmission et la réflexion d'une couche de matériau en fonction de son indice (effectif), de son impédance (effective) et son épaisseur. En inversant ces formules, on déduit les valeurs n_{eff} et z_{eff} en fonction de l'épaisseur d de la couche simulée à du coefficient de transmission $t' = S_{21}$ et de réflexion $r = S_{11}$ [90] :

$$\text{Re}(n_{\text{eff}}) = \pm\text{Re}\left(\frac{\arccos\left(\frac{1}{2t'}[1-(r^2-t'^2)]\right)}{kd}\right) + \frac{2\pi m}{kd} \tag{II.85a}$$

$$\text{Im}(n_{\text{eff}}) = \pm\text{Im}\left(\frac{\arccos\left(\frac{1}{2t'}[1-(r^2-t'^2)]\right)}{kd}\right) \tag{II.85b}$$

$$z_{\text{eff}} = \pm\sqrt{\frac{(1+r)^2-t'^2}{(1-r)^2-t'^2}} \tag{II.86}$$

où m un entier .
Grâce à l'argument physique de passivité, qui, avec la convention $e^{-i\omega t}$ se résume à $\text{Im}(n_{\text{eff}}) > 0$ et $\text{Re}(z_{\text{eff}}) > 0$, on peut lever l'ambiguïté sur le signe de (II.86) et (II.85). Le choix de l'entier m est plus subtil et peut mener à des ambiguïtés dues au choix de la branche à retenir de la fonction arccos prise dans le plan complexe. Ces ambiguïtés peuvent amener à l'obtention d'un indice présentant des artefacts sous forme de sauts discontinus, *a priori* dépourvus de sens (cf. FIGURE II.13). Dans nos travaux, pour remédier à cela, nous avons développé une procédure numérique nous permettant d'identifier automatiquement la branche adéquate. Le principe et les scripts associés à cette procédure de « recollement » des branches sont expliqués en détails en annexe de ce mémoire (page 175). L'idée est qu'à chaque saut dis-

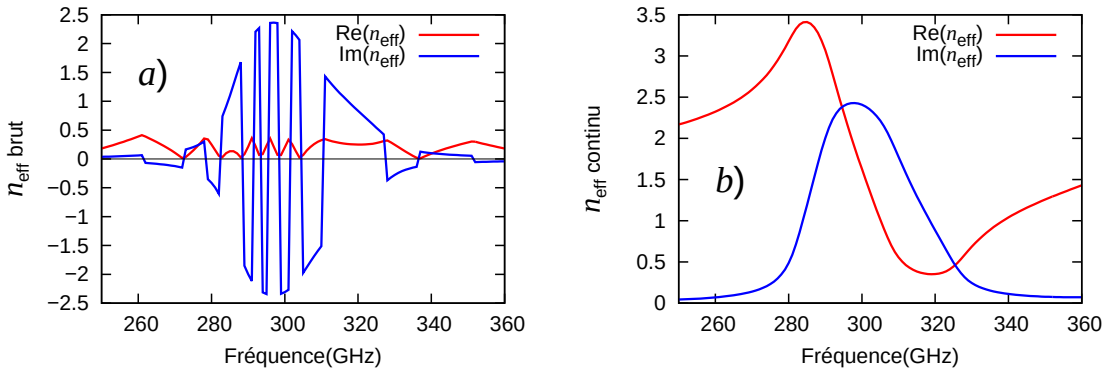

FIGURE II.13 – Extraction de l'indice effectif à partir des paramètres S en utilisant la formule (II.85). a) indice brut ; b) indice après application de la procédure de recollement des branches, rendu continu.

continu dans l'indice brut, on doit déterminer quelle nouvelle branche doit être adoptée pour assurer la continuité de l'indice. Notre analyse mathématique développée en annexe montre que le choix de la nouvelle branche en fonction de l'ancienne est univoque. En revanche, il est toujours nécessaire de faire « manuellement » un choix pour la première branche sur laquelle démarrer l'extraction à basse fréquence. Ce choix peut parfois revêtir un certain arbitraire (...et il nous a été donné de noter quelques erreurs flagrantes d'extraction dans la littérature dues à ce point précis). Dans notre cas de matériaux résonants, ce choix est guidé par le fait qu'à basse fréquence, loin de toute résonance, les paramètres effectifs doivent rejoindre une valeur constante ou quasi-constante (ainsi, dans le cas de matériaux constitutifs non-magnétiques, les perméabilités magnétiques μ_{eff} extraites doivent rejoindre la valeur $\mu_{\text{eff}} = 1$).

À partir de l'indice et de l'impédance effectifs, on peut également obtenir les paramètres effectifs ε_{eff} et μ_{eff} à l'aide des formules :

$$\varepsilon_{\text{eff}} = \frac{n_{\text{eff}}}{z_{\text{eff}}}, \qquad \mu_{\text{eff}} = n_{\text{eff}} \cdot z_{\text{eff}} \tag{II.87}$$

Limitations de la méthode NRW Ainsi que nous l'avons noté, la méthode d'extraction NRW peut dans certains cas amener à des résultats partiellement erronés. Dans [92], Chen et al. établissent une liste des erreurs éventuelles pouvant se produire lorsque l'on utilise cette méthode pour déduire les paramètres effectifs. Ils font état de trois types d'erreurs : le premier type d'erreur possible résulte d'une indétermination dans les limites du matériau, et donc dans l'épaisseur exacte de la couche étudiée. Pour un milieu composite, formé par exemple de sphères dans un milieu-hôte, les frontières du matériau sont difficiles à déterminer (sommets des sphères ? milieu des sphères ? limite de la maille unité ?), ce qui peut entraîner une indétermination de l'impédance effective. Pour remédier à cela, les auteurs déterminent par optimisation les limites du matériau en cherchant une impédance indépendante de l'épaisseur du matériau. Le second type de problème, est bien entendu celui de la détermination des branches appropriées (choix de l'entier m dans (47a)). Un troisième problème apparaît quand un des paramètres S approche de zéro : dans ce cas, l'impédance extraite présente des pics parasites sans signification physique (on peut en voir un exemple dans la FIGURE V.21).

Enfin, une dernière difficulté vient du fait que l'on souhaite extraire des propriétés effectives de volume pour les structures étudiées, correspondant à des milieux infinis dans toutes les directions de l'espace, mais que dans les simulations, ces dernières sont nécessairement finies dans la direction de propagation. Ainsi, les effets de taille finie liés à la présence des interfaces ne peuvent être *a priori*

éliminés, ceci étant tout particulièrement vrai dans le cas de matériaux composites dans lesquelles la séparation d'échelle entre la taille des inclusions et l'épaisseur n'est pas nécessairement très marquée. L'hypothèse sous-jacente à l'extraction NRW est qu'à partir d'un certain nombre de couches, à déterminer au cas par cas, les valeurs extraites en NRW rejoignent celles de volume. Ces difficultés nous ont poussé à considérer une autre méthode d'extraction, que l'on puisse comparer indépendamment aux résultats obtenus selon NRW. Cette méthode alternative, basée notamment sur les réflexions de Simovski sur le sujet [94, 95], a été développée par Scher et Kuester dans [93].

II.3.3-b Méthode d'extraction de Scher et Kuester

Nous nous intéresserons ici à la méthode d'extraction des paramètres effectifs proposée par Scher et al. [93], dans laquelle les propriétés de volume du métamatériau sont déduites du champ diffusé non pas par un certain nombre de couches estimé suffisant pour reproduire un matériau infini dans la direction de propagation, mais par *une seule couche planaire* de particules. Il est à noter que les équations utilisées par les auteurs de cette publication ont été écrites avec la convention $e^{j\omega t}$ pour la dépendance temporelle. Par souci de cohérence avec le reste de ce manuscrit, nous les avons réécrites avec la convention temporelle $e^{-i\omega t}$, en remplaçant j par $-i$.

Nous commençons par considérer un métamatériau infini dans les trois directions de l'espace, formé par un arrangement rectangulaire (orthorhombique) de particules dont la cellule unitaire est représentée sur la FIGURE II.14, avec a, b et d les paramètres de maille dans les directions x, y et z respectivement. Pour simplifier le problème, on utilise l'approximation des dipôles ponctuels (« point-dipole approxi-

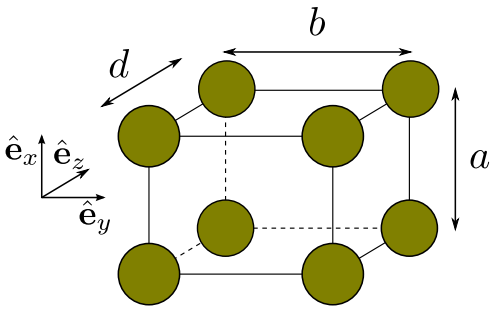

FIGURE II.14 – Cellule unitaire du métamatériau d'extension infinie considérée pour la procédure d'extraction de Scher et Kuester.

mation » en anglais) dans laquelle les champs produits par une particule individuelle sont approximés par ceux produits par un dipôle ponctuel situé au centre de la particule. Dans cette approximation, les contributions dues aux multipôles d'ordre supérieur sont négligées. Par conséquent, cette approche est restreinte à des particules de dimensions suffisamment petites devant la longueur d'onde pour que la variation du champ local sur le volume de la particule puisse être ignorée.
Pour obtenir les paramètres effectifs de ce métamatériau tridimensionnel, Scher et Kuester font appel à la formule de Clausius-Mossotti :

$$\varepsilon_{\mathrm{r,eff}}^{jj} = 1 + \frac{N\alpha_{\mathrm{E}}^{jj}}{1 - C^{jj} N\alpha_{\mathrm{E}}^{jj}}, \qquad \mu_{\mathrm{r,eff}}^{jj} = 1 + \frac{N\alpha_{\mathrm{M}}^{jj}}{1 - C^{jj} N\alpha_{\mathrm{M}}^{jj}} \tag{II.88}$$

pour $j = x, y$ ou z.

Dans cette formule, $N = 1/(abd)$, le paramètre C^{jj} représente la constante dite de couplage dynamique du réseau, et α_{E}^{jj} et α_{M}^{jj} sont les composantes diagonales des tenseurs de polarisabilité électrique et magnétique selon l'axe j. Notons que, sur le principe, cette méthode d'extraction permet la description de différents types de particules (ellipsoïdes, cylindres, etc.). Dans ce qui suit ne sera considéré que le cas de particules sphériques isotropes.

Dans leur publication, Scher et Kuester donnent les expressions générales du facteur de couplage dynamique du réseau C^{jj}, pour une maille orthorhombique quelconque ; nous nous intéressons au cas plus simple qui nous concernera par la suite, celui d'une structure cubique avec $a = b = d$. Aux fréquences de travail pour lesquelles on peut considérer que les distances entre particules sont très petites devant à la fois la longueur d'onde dans la structure et dans le vide, ce facteur de couplage dynamique C^{jj} tend vers sa valeur statique C_{s}^{jj}. Ainsi on peut utiliser dans la formule (II.88) l'approximation suivante :

$$C^{jj} = C_{\mathrm{s}}^{jj} - i\frac{k_0^3}{6\pi N}, \tag{II.89}$$

où, dans le cas cubique, la constante de couplage statique entre les couches est simplement réduite au facteur de Lorentz : $C_{\mathrm{s}}^{jj} = 1/3$.

Afin d'obtenir les valeurs des paramètres effectifs issus (II.88), il reste à calculer les polarisabilités des particules : l'idée est alors de les évaluer à partir de la réponse d'une seule des couches qui le forment, éclairée par une onde plane en incidence normale comme représenté sur la FIGURE II.15. On choisit donc

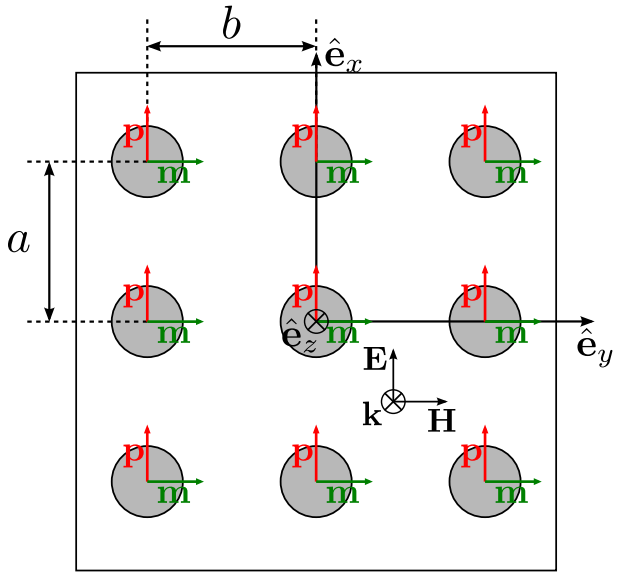

FIGURE II.15 – Couche plane de particules excitées par une onde plane en incidence normale. Cette excitation induit un dipôle électrique **p** et un magnétique **m**

de considérer une couche infinie du matériau dans le plan $(\hat{\mathbf{e}}_x, \hat{\mathbf{e}}_y)$, le métamatériau tridimensionnel dans son ensemble étant composé d'une infinité de ces couches superposées dans la direction z et séparées par la distance d. L'onde plane incidente, définie par $\mathbf{E}_{\mathrm{inc}} = \hat{\mathbf{e}}_x E_0 \mathrm{e}^{ik_0 z}$ et $\mathbf{H}_{\mathrm{inc}} = \hat{\mathbf{e}}_y H_0 \mathrm{e}^{ik_0 z}$, induit la polarisation de la couche et donne naissance aux dipôles électriques $\mathbf{p} = \hat{\mathbf{e}}_x|\mathbf{p}|$ et magnétiques $\mathbf{m} = \hat{\mathbf{e}}_y|\mathbf{m}|$.
Chaque dipôle est relié aux champs locaux $\mathbf{E}_{\mathrm{loc}}$ et $\mathbf{H}_{\mathrm{loc}}$, superposition des champs incidents et des champs

produits par les autres dipôles de la couche, via les polarisabilités électriques et magnétiques :

$$\mathbf{p} = \varepsilon_0 \alpha_{\mathrm{E}}^{xx} \mathbf{E}_{\mathrm{loc}} \tag{II.90}$$

$$\mathbf{m} = \mu_0 \alpha_{\mathrm{M}}^{yy} \mathbf{H}_{\mathrm{loc}} \tag{II.91}$$

À partir de ces expressions des dipôles, Scher et Kuester calculent les expressions pour les champs locaux exercés sur chaque particule dans la couche, puis pour le champ lointain total rayonné par la couche lorsqu'elle est illuminée par l'onde plane. De cette dernière expression, ils peuvent déduire les paramètres S théoriques de la couche, traduisant la réflexion et la trasmission de l'onde plane à la traversée de la couche. Enfin, en inversant ces dernières relations, ils trouvent l'expression des polarisabilités des sphères en fonction des paramètres S :

$$\alpha_{\mathrm{E}}^{xx} = \frac{-ia^3(S_{11}\mathrm{e}^{-i2k_0 l} + S_{21}\mathrm{e}^{-i2k_0 l} - 1)}{k_0 a - iC_0^{xx}(S_{11}\mathrm{e}^{-i2k_0 l} + S_{21}\mathrm{e}^{-i2k_0 l} - 1)} \tag{II.92}$$

$$\alpha_{\mathrm{M}}^{yy} = \frac{-ia^3(-S_{11}\mathrm{e}^{-i2k_0 l} + S_{21}\mathrm{e}^{-i2k_0 l} - 1)}{k_0 a - iC_0^{yy}(-S_{11}\mathrm{e}^{-i2k_0 l} + S_{21}\mathrm{e}^{-i2k_0 l} - 1)} \tag{II.93}$$

où $C_0^{xx} = C_0^{yy}$ sont les coefficient de couplage intra-couche donnés par les expressions suivantes :

$$\begin{aligned} C_0^{xx}(k_0,a) = a^3 \mathrm{Re}\Bigg\{ & \frac{-2}{\pi a}\sum_{n=1}^{\infty}\sum_{m=1}^{\infty} p_m^2 K_0(p_m b_n) + \frac{k_0^2}{2a}\sum_{n=1}^{\infty}\left(\frac{2}{g_n a} - \frac{1}{\pi n}\right) \\ & + \frac{1}{\pi a^3}\sum_{m=1}^{\infty}\frac{(-2ik_0 a+3)m+2}{m^3(m+1)(m+2)}\mathrm{e}^{ik_0 am} + \frac{k_0^2}{2a\pi}\left(\ln\frac{k_0 a}{4\pi} + 0.577\right) \\ & + \frac{1}{4\pi a^3}[-2(-ik_0 a+1)(t_+^2 \ln t_- + \mathrm{e}^{-ik_0 a}) + 4ik_0 a(t_+ \ln t_-) + 3]\Bigg\} - ia^3\left\{-\frac{k_0}{2a^2} + \frac{k_0^3}{6\pi}\right\} \end{aligned} \tag{II.94}$$

avec $K_0(x)$ l'ordre zéro de la fonction modifiée de Bessel (comme défini à la section 9.6 de [96]),

$$p_m = \sqrt{\left(\frac{2\pi m}{a}\right)^2 - k_0^2}, \qquad g_n = \sqrt{\left(\frac{2\pi n}{a}\right)^2 - k_0^2}, \tag{II.95}$$

et

$$t_+ = 1 - \mathrm{e}^{-ik_0 a}, \qquad t_- = 1 - \mathrm{e}^{+ik_0 a}. \tag{II.96}$$

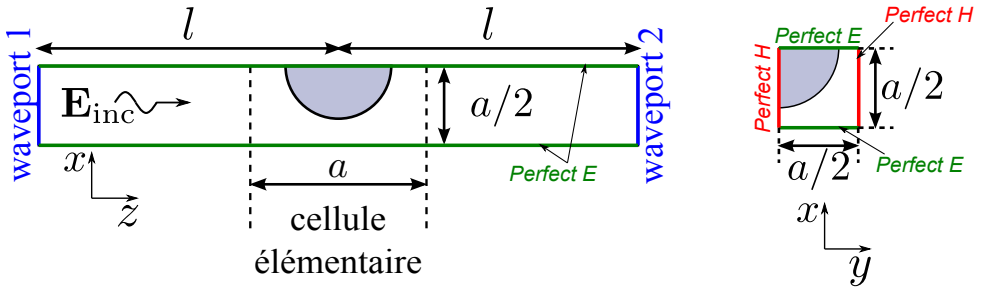

FIGURE II.16 – Structure HFSS® à simuler pour obtenir les résultats par la méthode de Kuester.

Pour calculer les paramètres effectifs du matériau tridimensionnel, on procède donc à une simulation numérique de la réponse *d'une seule couche de particules* à l'aide de HFSS®, représentée sur la FIG-

URE II.15 (en prenant comme configuration de cellule de simulation celle définie par la FIGURE II.16). Ceci donne accès aux valeurs simulées des paramètres S de la couche, à partir desquels on retrouve les polarisabilités grâce aux équations (II.92) et (II.93). On introduit finalement les valeurs de ces polarisabilités dans les formules (II.88), ce qui donne finalement les valeurs des paramètres effectifs $\varepsilon_{r,eff}$ et $\mu_{r,eff}$ recherchées pour le matériau tridimensionnel comportant une succession infinie de couches.

On voit donc ainsi que la méthode de Scher et Kuester permet de s'affranchir des problèmes de taille finie que l'on peut rencontrer dans la méthode NRW, car elle reconstruit la réponse d'un matériau tridimensionnel à partir de la réponse d'une seule de ses couches. Cependant, elle suppose une connaissance de la structure et de l'organisation (forme des particules et type de réseau) du matériau composite étudié.

II.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons présenté les différentes théories et méthodes permettant de modéliser les métamatériaux à bases de sphères diélectriques.

Premièrement, nous avons exposé la théorie de Mie permettant de décrire de manière exacte la diffusion de la lumière par une sphère isolée, en fonction du contraste entre son indice et celui du milieu-hôte, ainsi que du rapport entre sa taille et la longueur d'onde incidente. Nous avons vu que pour des matériaux diélectriques de permittivité élevée, cette théorie prévoit des résonances magnétiques et électriques dominant la réponse électromagnétique de la sphère pour des tailles de particules petites devant la longueur d'onde.

Nous avons ensuite abordé la théorie de Maxwell Garnett, théorie du milieu effectif permettant la description électromagnétique de milieux composites constitués d'inclusions discrètes dans un milieu hôte. Parmi les nombreuses extensions de cette théorie largement utilisée et discutée dans la littérature, nous nous sommes intéressés à une extension prenant en compte la diffusion dipolaire de Mie. Les principales limites de validité de cette théorie ont aussi été discutée.

Enfin, dans la dernière partie de ce chapitre, nous avons présenté la méthode des éléments finis ainsi que l'outil de simulation que nous avons utilisé : le logiciel HFSS®. Nous avons décrit deux méthodes indépendantes d'extraction des paramètres effectifs, la méthode de NRW et la méthode de Scher et Kuester. Nous serons ainsi en mesure d'avoir des données numériques que nous pourrons comparer aux prédictions des modèles analytiques sur les différents systèmes étudiés.

Chapitre III

Magnétisme artificiel dans la gamme térahertz

Dans cette partie nous allons aborder les résultats issus de notre travail concernant le magnétisme artificiel dans la gamme de fréquence térahertz. Ces travaux, visant à réaliser en pratique des métamatériaux à perméabilité négative dans le térahertz, ont été réalisées en collaboration avec une équipe de chimistes [1] de l'Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux (ICMCB) dont le but était la fabrication des résonateurs diélectriques, et, une équipe de physiciens [2] du Laboratoire Ondes et Matières d'Aquitaine (LOMA) dont le but était de mesurer les propriétés électromagnétiques des (méta)matériaux. Nous considérerons la gamme de fréquence allant de 200 GHz à 1 THz.
Pour obtenir un fort magnétisme dans cette gamme de fréquence, nous utiliserons les mêmes principes que dans [47, 48], c'est à dire, exploiter la résonance magnétique dipolaire de Mie des particules individuelles pour donner une réponse macroscopique dont la perméabilité est différente de 1. Ce chapitre s'organisera de la manière suivante :

- Premièrement, nous aborderons la condition de résonance magnétique dipolaire et nous verrons ce qu'elle implique quant au choix du matériau pour les résonateurs (permittivité élevée et faibles pertes).
- Ensuite, en fonction de ces contraintes, nous examinerons différents matériaux susceptibles d'être utilisé comme résonateur diélectrique dans la gamme de fréquence 200 GHz-1 THz.
- nous verrons ensuite les résultats obtenus avec Maxwell Garnett et leur comparaison avec des simulations numériques des éléments finis, cela pour différentes fractions volumiques et différents types de réseau.

III.1 Résonance magnétique de matériaux diélectriques dans le domaine térahertz

Dans cette partie, nous étudions d'abord la condition de résonance magnétique dipolaire de Mie, puis, nous en déduisons les valeurs des permittivités du matériau requises pour réaliser un résonateur magnétique.

1. U. Chung, S. Mornet et M. Maglione
2. R. Yahiaoui et P. Mounaix

III.1.1 Conditions d'apparition des résonances dipolaires de Mie

Ainsi que nous l'avons vu précédemment, pour des sphères diélectriques d'indice élevé ($\mathrm{Re}(m)$ grand), il existe des résonances magnétique et électrique de Mie. Lors de ces résonances, de forts courants de polarisation apparaissent à intérieur de la particule donnant naissance à un moment magnétique ou électrique. Pour un milieu composé de ces sphères concentrées à une fraction volumique suffisamment haute dans un milieu-hôte, cette résonance individuelle peut donner une réponse magnétique et/ou électrique macroscopique du métamatériau. C'est la base de la démarche suivie dans notre travail. Dans ce paragraphe nous n'allons pas considérer les pertes diélectriques, le paramètre m étant ainsi réel, mais ces résultats restent valides pour m complexe, en prenant la partie réelle des grandeurs.
Ainsi, pour obtenir une idée du comportement des résonances dipolaires de Mie, reprenons les expressions exactes des coefficients dipolaires de Mie (II.23) et (II.24) :

$$a_1 = \frac{m\psi_1(m\tau)\psi_1'(\tau) - \psi_1(\tau)\psi_1'(m\tau)}{m\psi_1(m\tau)\xi_1'(\tau) - \xi_1(\tau)\psi_1'(m\tau)} \tag{III.1}$$

$$b_1 = \frac{\psi_1(m\tau)\psi_1'(\tau) - m\psi_1(\tau)\psi_1'(m\tau)}{\psi_1(m\tau)\xi_1'(\tau) - m\xi_1(\tau)\psi_1'(m\tau)} \tag{III.2}$$

Les résonances de ces coefficients ont lieu lorsque leur dénominateur est proche de zéro (minimum).

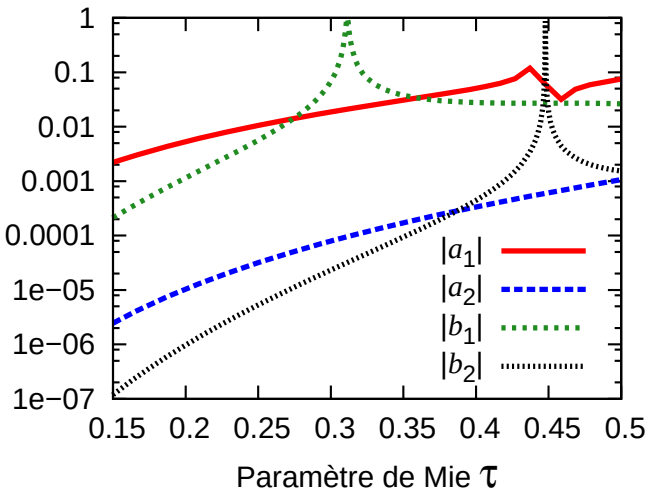

FIGURE III.1 – Premiers coefficients de Mie en fonction de τ pour un matériau sans pertes d'indice élevé ($m = 10$).

Pour plus de clarté, nous rappelons la FIGURE (II.2) et allons l'analyser en détail, afin de comprendre le comportement des résonances de ces coefficients. Nous cherchons le terme dominant de leur dénominateur, pour un régime où $\tau \ll 1$, $m \gg 1$ et $m\tau \sim 1$ (cf. FIGURE III.1).
Dans ces conditions, les termes dominants du dénominateur seront ceux comportant le terme m, ainsi, le terme $m\psi_1(m\tau)\xi_1'(\tau)$ est dominant pour a_1, le terme $m\xi_1(\tau)\psi_1'(m\tau)$ pour b_1. De plus les fonctions de Bessel étant des fonctions oscillantes, le comportement des racines du produit de 2 de ces fonctions va être dicté par celle de fréquence la plus élevée, c'est-à-dire par la fonction comportant le terme $m\tau$.
Ainsi, la fonction dont les racines dictent les résonances de a_1 sera, en première approximation, $\psi_1(m\tau)$:

$$\psi_1(m\tau) = \frac{\sin(m\tau)}{m\tau} - \cos(m\tau) \tag{III.3}$$

Les minima de cette fonction donnent les résonances du coefficient dipolaire a_1 comme on peut le voir

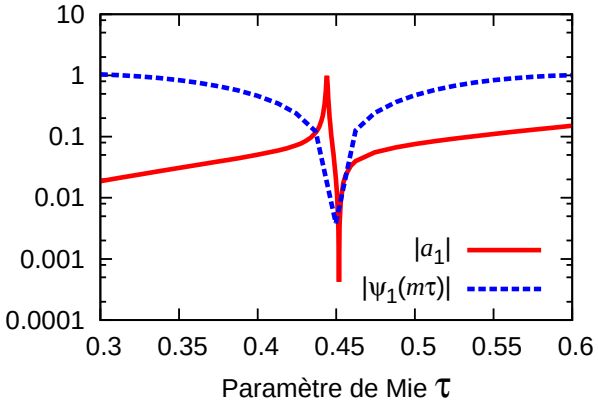

FIGURE III.2 – Pour le coefficient dipolaire électrique a_1, la première résonance est obtenue lorsque la fonction $|\psi_1(m\tau)|$ est minimale (matériau avec $m = 10$).

sur la FIGURE III.2 et, en trouvant ce minimum, on peut donc avoir une idée de la valeur du paramètre $m\tau$ à la résonance. Comme on le voit sur la FIGURE III.3 la fonction ψ_1 tend vers $cos(m\tau)$ quand τ dépasse 0.3. Ainsi, la résonance électrique dipolaire fondamentale de a_1 est donnée, en première approximation,

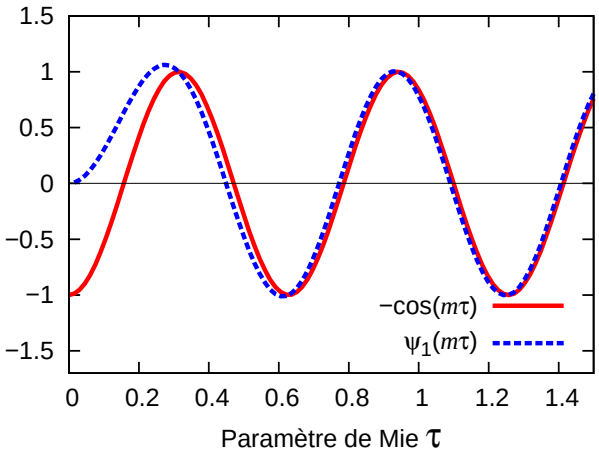

FIGURE III.3 – Comportement de la fonction $\psi_1(m\tau)$ qui tend vers $-\cos(m\tau)$ pour τ grand.

par le premier zéro de $cos(m\tau)$ pour $\tau > 0.3$, c'est à dire pour $m\tau = \dfrac{3\pi}{2} \approx 4,7$. Certes il existe un écart entre cette valeur et la valeur exacte du premier zéro de $|\psi_1(m\tau)|$, qui a lieu pour $m\tau \simeq 4,44$, mais cette approximation permet néanmoins de faire une rapide évaluation de la position de la résonance (voir FIGURE III.1).

Pour avoir un idée des résonances de b_1, on développe le dénominateur de (III.2) :

$$4i\pi^4 m^3 \tau^8 (i\sin(\tau) + \cos(\tau)) \left[\sin(m\tau)m^2(1 - i\tau) + cos(m\tau)m\tau - sin(m\tau)\right] \tag{III.4}$$

Comme nous l'avons dit précédemment les termes dominant sont ceux comportant le terme de puissance de m la plus haute et les fonctions oscillantes dominantes celles dépendant du produit $m \cdot \tau$. Dans l'ex-

pression (III.4) il s'agit du terme en $\sin(m\tau)m^2$ dans l'expression entre [ ]. Ainsi la fonction dont les racines dictent les résonances de b_1 sera, en première approximation, la fonction $|\sin(m\tau)|$ comme on peut le voir sur la FIGURE III.4. On peut en tirer des conditions de résonances très simples ; Pour b_1

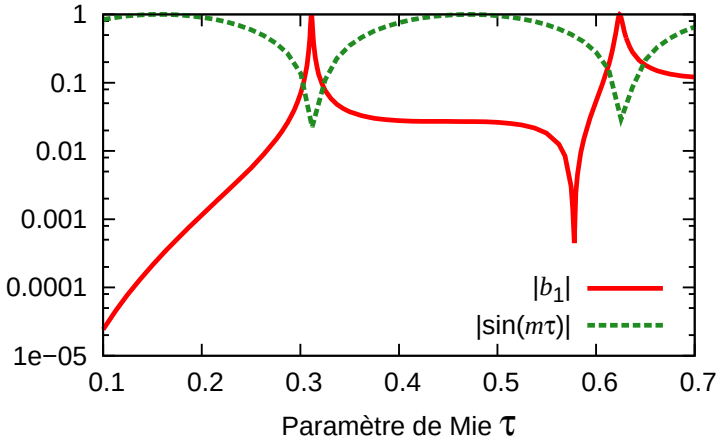

FIGURE III.4 – Résonance dipolaire magnétique de Mie est donné par la fonction $|\sin(m\tau)|$ (matériau avec $m = 10$)

celles ci auront lieu pour les minima de la fonction $|\sin(m\tau)|$, c'est-à-dire pour :

$$m\tau = k\pi \quad k \in \mathbb{N} \tag{III.5}$$

Ainsi la résonance magnétique dipolaire fondamentale aura lieu pour $m\tau = \pi$.

III.1.2 Résonances de Mie magnétique dipolaire et condition du milieu effectif

Nous nous intéressons maintenant uniquement à la résonance dipolaire magnétique de Mie d'un matériau diélectrique de permittivité complexe. Nous tiendrons dorénavant compte des pertes du diélectrique et, dans ce cas, la condition de résonance fondamentale de b_1 devient :

$$\mathrm{Re}(\tau \cdot m) \approx \pi \tag{III.6}$$

car $m = \dfrac{n_\mathrm{p}}{n_\mathrm{h}}$ est un nombre complexe pour un matériau possédant des pertes.
En explicitant les paramètres, on obtient :

$$\mathrm{Re}(\tau \cdot m) = \mathrm{Re}\left(\frac{2\pi n_\mathrm{h} r}{\lambda_0} \cdot \frac{n_\mathrm{p}}{n_\mathrm{h}}\right) = \frac{2\pi \mathrm{Re}(n_\mathrm{p}) r}{\lambda_0} = \frac{2\pi r}{\lambda_\mathrm{p}} \tag{III.7}$$

où $\lambda_\mathrm{p} = \dfrac{\lambda_0}{\mathrm{Re}(n_\mathrm{p})}$ est la longueur d'onde à l'intérieur de la particule.
Donc d'après l'équation (III.6), on a :

$$\frac{2\pi r}{\lambda_\mathrm{p}} \approx \pi \quad \Rightarrow \quad \lambda_\mathrm{p} \approx 2r = d \tag{III.8}$$

En d'autres termes, cette résonance a lieu quand la longueur d'onde λ_p à l'intérieur de la particule est de l'ordre du diamètre d de la particule. Il s'agit de la résonance de cavité fondamentale de la particule.

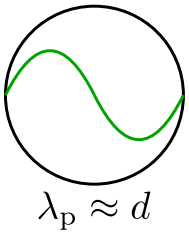

FIGURE III.5 – Résonance dipolaire magnétique fondamentale de Mie

Le but de ces travaux est d'obtenir un matériau effectif dont la perméabilité est négative dans le térahertz. Il nous faut utiliser des particules bien plus petites que la longueur d'onde d'intérêt pour pouvoir considérer le milieu comme homogène. On peut connaître le rapport entre la longueur d'onde incidente et le diamètre des particules à la résonance,en remplaçant λ_p dans la formule (III.8) :

$$d \approx \frac{\lambda_0}{\mathrm{Re}(n_p)} \tag{III.9}$$

Ce qui signifie que si l'on prend comme condition de validité du milieu effectif

$$\frac{\lambda_0}{10} > d, \tag{III.10}$$

il nous faut un matériau dont la permittivité vérifie

$$\mathrm{Re}(n_p) > 10. \tag{III.11}$$

Pour un milieu non magnétique, $n_p = \sqrt{\varepsilon_p}$. En utilisant les notations habituelles $\varepsilon_p = \varepsilon_p^{'} + i \cdot \varepsilon_p^{''}$ pour la fonction diélectrique, l'indice s'écrit :

$$n_p = \left(\varepsilon_p' + i\varepsilon_p''\right)^{1/2} = {\varepsilon_p'}^{1/2} \left(1 + i\frac{\varepsilon_p''}{\varepsilon_p'}\right)^{1/2}, \tag{III.12}$$

ce qui donne pour un milieu de pertes faibles,

$$n_p \approx {\varepsilon_p'}^{1/2} \left(1 + i\frac{\varepsilon_p''}{2\varepsilon_p'}\right) \quad \Rightarrow \quad \mathrm{Re}(n_p) \approx \mathrm{Re}\left(\varepsilon_p^{1/2}\right) \tag{III.13}$$

La condition (III.11) avec la permittivité s'écrit donc :

$$\mathrm{Re}(\varepsilon_p) > 100 \tag{III.14}$$

Ainsi, il est nécessaire d'utiliser un matériau d'indice optique élevé pour faire office de résonateur du milieu-composite.
Cette condition peut être remplie de 2 manières : la première en utilisant des matériaux polaritoniques près de leur résonance comme dans [43, 47, 48]. La deuxième possibilité est d'utiliser des matériaux ayant, hors résonance, une permittivité élevée. L'avantage de la seconde option est que l'on est loin de

ν en THz	nombre d'onde en cm^{-1}	λ en μm
0,3	10	1000
0,5	16,7	600
1	33,4	300
2	66,7	150
3	100	100

TABLEAU III.1 – Équivalences entre fréquence (en THz), nombre d'onde (en cm^{-1}) et longueur d'onde (en μm)

toute résonance du matériau, et ainsi, de toutes les pertes qui y sont liées.
Dans la section suivante, nous examinons la liste de matériaux susceptibles de posséder les propriétés adéquates pour réaliser un métamatériau à perméabilité négative dans le domaine térahertz.

III.1.3 Matériau de haute permittivité dans la gamme térahertz

Nous restituons ici la recherche bibliographique que nous avons effectuée afin de trouver le meilleur matériau possible pour réaliser les résonateurs dans la gamme de fréquence allant de 200 GHz à 1 THz. Ces travaux ayant pour but la réalisation pratique des métamatériaux, le meilleur matériau possible sera celui ayant la plus haute permittivité réelle combinée à un niveau de pertes le plus bas possible.
Le niveau de pertes du matériau sera caractérisé par le paramètre $\tan(\delta) = \frac{\varepsilon_p''}{\varepsilon_p'}$.
Nos collaborateurs expérimentateurs nous ont signalé que pour un niveau de pertes $\tan(\delta) > 5\%$, la mesure des propriétés commence à devenir difficile en raison d'une trop forte absorption entraînant un rapport signal sur bruit élevé. Cette condition sur les pertes associées à la condition (III.14) sur la partie réelle ε_p' forment le couple de contraintes qui guidera nos choix.
Nous avons ainsi commencé par rechercher des matériaux pouvant présenter intrinsèquement des permittivités élevées dans la gamme de fréquence THz. La première idée est de considérer les céramiques couramment utilisée dans la gamme micro-onde (aux alentours de la dizaine de GHz) pour leurs bonnes propriétés diélectriques. La liste des matériaux que nous avons considérée a été établie sur les indications de nos collaborateurs chimistes de l'ICMCB, en tenant compte de la difficulté de leur synthèse ou d'approvisionnement.
Les données collectées sont soit issues de la littérature, soit issues de mesures effectuées par nos collaborateurs du LOMA. Pour avoir facilement une idée des fréquences utilisées dans les différentes mesures expérimentales, nous introduisons le TABLEAU de conversion III.1.

III.1.3-a Titanate de Baryum Strontium ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$, BST)

Le BST est un matériau ferroélectrique de la famille des Perovskites qui est couramment utilisé dans la gamme micro-onde pour ses propriétés diélectriques exceptionnelles (permittivité « géante »). Les férroélectriques ont en commun le leur changement d'état en dessus de la température de Curie T_C où ils deviennent paramagnétiques. L'exploitation de ce changement de propriétés avec la température permet d'envisager une accordabilité des structures composés de ces matériaux.

Données expérimentales Nous avons recueilli des données pour plusieurs stoechiométries de $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$. Les premières données expérimentales sont issues du travail du groupe de J. Petzelt [97] sur un film de 420 nm d'épaisseur de $Ba_{0,1}Sr_{0,9}TiO_3$, déposé par épitaxie selon la méthode MOCVD (Metal-Organic Chemical Vapour Deposited) directement sur un substrat de saphir (orienté (0001)). L'étude de la fonction diélectrique de ce film a été effectuée par transmission. Les spectres de transmission obtenus ont été ajustés par un modèle d'oscillateur harmonique amorti pour déterminer les paramètres du mode transverse optique (TO), puis, la fonction diélectrique. Les résultats sont présentés sur la FIGURE III.6. Les

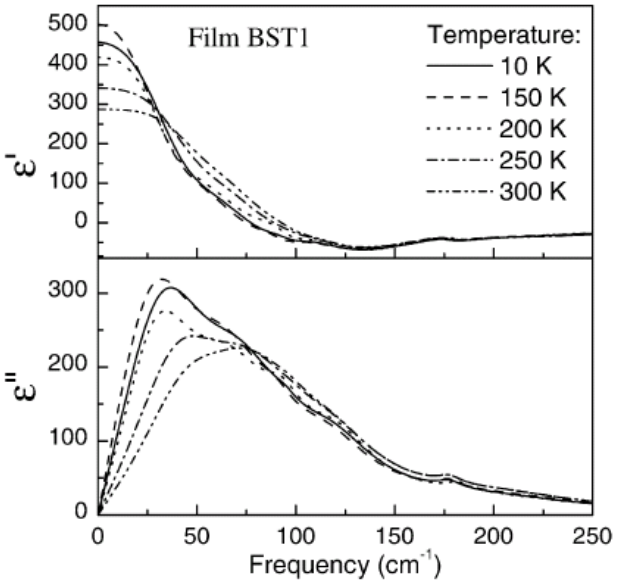

FIGURE III.6 – Fonction diélectrique réelle et imaginaire de $Ba_{0,1}Sr_{0,9}TiO_3$ en fonction du nombre d'onde en cm^{-1}, selon la référence [97].

deuxièmes données expérimentales concernent un film de 500 nm d'épaisseur de $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$, déposé sur un substrat de saphir de 500 µm par méthode sol-gel [98]. L'étude de la fonction diélectrique de ce film a été effectuée par spectroscopie térahertz en transmission dans le domaine temporel (en anglais : THz Time Domain Spectroscopy (THz-TDS)). Les résultats des mesures ainsi que ceux issu d'un modèle Cole-Cole [99] sont représentés sur la FIGURE III.7.

Conclusions À la vue des données expérimentales, on remarque que les valeurs de ε'' sont très élevées ($\tan(\delta) \geq 10\%$) dans tout le domaine d'étude térahertz (voir la TABLEAU III.1 pour la conversion) pour les deux types de BST considérés ; on peut donc prévoir que l'absorption étant importante, la mesure en transmission sera impossible et qu'un matériau contenant ce type de résonateur sera certainement trop opaque aux ondes térahertz.
Le $Ba_{0,1}Sr_{0,9}TiO_3$ et $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ ne semblent donc pas être de bons « candidat » pour l'élaboration d'un matériau à permittivité négative. Cependant, on ne peut pas écarter complètement le BST car il se peut que pour d'autres stœchiométries, les valeurs des pertes soient plus faibles dans le domaine térahertz. Dans le cadre de ce travail nous ne considérerons pas ce matériau.

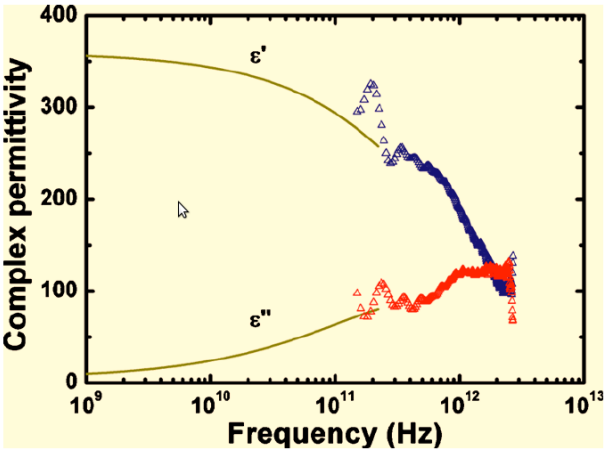

FIGURE III.7 – Fonction diélectrique réelle et imaginaire de $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ en fonction de la fréquence modélisé par une fonction Cole-Cole (traits pleins) et mesuré par TDS (points triangulaires), selon la référence [98].

III.1.3-b L'oxyde de Magnésium (MgO)

Dans la gamme micro-onde, le MgO est connu pour ses propriétés diélectriques intéressantes et est utilisé comme barrière isolante dans les jonctions tunnels par exemple.

Données expérimentales Les mesures expérimentales ont été réalisées sur un cristal de MgO commercial (fourni par le laboratoire de l'Intégration du Matériau au Système (IMS) auquel j'appartiens) de 500 µm d'épaisseur, et caractérisé par spectroscopie térahertz en transmission dans le domaine temporel (en anglais : THz Time Domain Spectroscopy (THz-TDS)). Ces mesures sur MgO ont été effectuées par P. Mounaix et R. Yahiaoui du LOMA. La permittivité obtenue à partir de ces mesures est présentée sur la FIGURE III.8. Il est à noter que la partie où $\tan(\delta)$ devient négative est erronée, et correspond en réalité à des incertitudes sur la mesure. Nous remarquons que les pertes de MgO sont tellement faibles qu'il devient difficile de les mesurer.

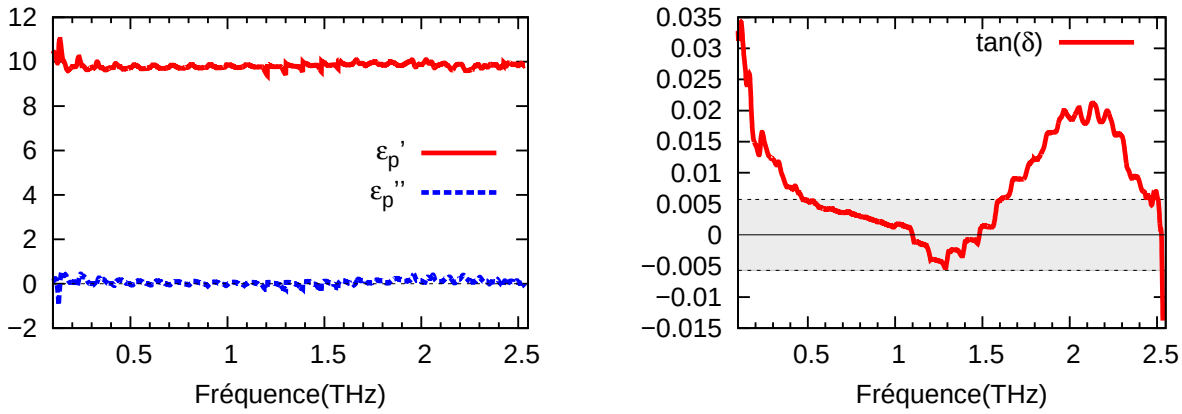

FIGURE III.8 – Permittivité diélectrique (à gauche) et pertes (à droite) de MgO en fonction de la fréquence en THz, mesurées au CPMOH par R.Yahiaoui et P.Mounaix.

Conclusions La permittivité du MgO est quasi-constante dans le domaine térahertz, avec pour valeur $\mathrm{Re}(\varepsilon'_{\mathrm{p}}) = 10$. D'après le critère de résonance donné par l'équation (III.6), le paramètre de Mie à la résonance vaut :

$$\tau \approx \frac{\pi}{\mathrm{Re}(m)}. \tag{III.15}$$

Avec $\mathrm{Re}(m) \approx \sqrt{10} \approx 3,16$, cette condition nous donne $\tau \approx 1$ pour MgO. Dans ces conditions, l'hypothèse $\tau \ll 1$ n'est bien sur pas du tout valide. La permittivité de MgO est trop faible pour en faire un bon candidat (du moins sur la base de l'échantillon étudié au LOMA). Dans ce cas, on se situe hors du champ des « matériaux effectifs »(homogènes) et on entre dans celui des cristaux photoniques.

III.1.3-c Titanate de Magnésium ($MgTiO_3$)

Le titanate de magnésium est aussi un matériau très utilisé comme céramique diélectrique.

Données expérimentales Les données expérimentales collectées proviennent des travaux conjugués des groupes de V. M. Ferreira et J. Petzelt sur des cristaux de $MgTiO_3$ sous forme ilménite [100]. Les propriétés diélectriques des cristaux ont été établies par mesure de réflectivité ou de transmission et sont présentées sur les FIGUREs III.9 et III.10.

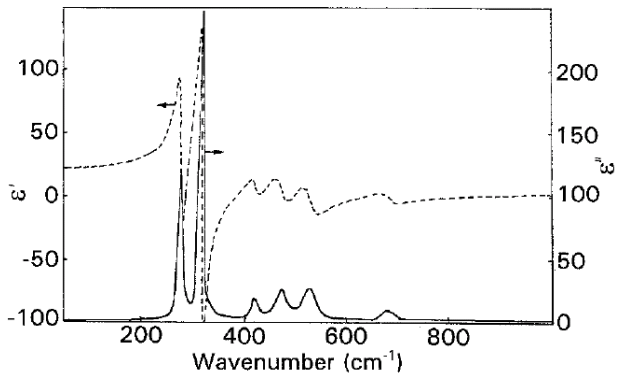

FIGURE III.9 – Permittivité de $MgTiO_3$ (ε' en pointillé et ε'' en trait plein) en fonction de la fréquence en cm^{-1}, selon la référence [100].

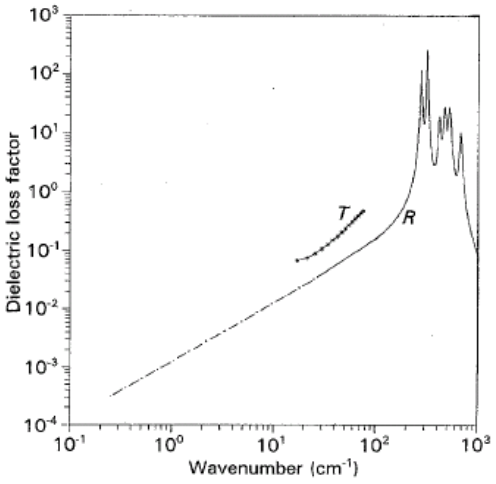

FIGURE III.10 – Pertes diélectriques (ε'') de l'échantillon n° 1 mesurées par transmission (T) et par réflectivité (R). Les pointillés sont une extrapolation linéaire des mesures expérimentales vers la gamme des micro-ondes (selon la référence [100]).

Conclusions D'après (III.9), avec une permittivité diélectrique moyenne de l'ordre de 23, la taille des particules à la résonance pour $MgTiO_3$ serait de :

$$d \approx \frac{\lambda_0}{4,79}, \tag{III.16}$$

soit des particules environ 5 fois plus petites que la longueur d'onde incidente. Ceci est à la limite de ce qui est acceptable pour considérer le matériau comme homogénéisable. Cependant, le faible niveau de pertes à basse fréquence ($\tan(\delta) \leq 2,5\%$) en fait un candidat à retenir.

III.1.3-d Tantalate de Lithium ($LiTaO_3$)

L'utilisation de $LiTaO_3$ a été suggérée dans plusieurs publications [43, 47, 48] pour former des résonateurs dans l'infrarouge où sa résonance polaritonique permet d'atteindre des permittivités très élevées. Néanmoins, même loin de cette résonance, à plus basse fréquence, en particulier dans le térahertz, sa permittivité reste très élevée.

Données expérimentales Les mesures expérimentales ont été menées par nos collaborateurs du LOMA, sur un échantillon cristallin de $LiTaO_3$ de 100 µm d'épaisseur, par spectroscopie térahertz en transmission dans le domaine temporel (THz-TDS). Les valeurs de ε'_p correspondent bien à celles mesurées dans la littérature ([48] [101]) mais celles de ε''_p sont un peu plus élevées (de l'ordre de 2% selon [48] et [101]). Les résultats sont présentés sur la FIGURE III.11.

Conclusions Avec une permittivité diélectrique moyenne de l'ordre de 47, la taille des particules à la résonance pour $LiTaO_3$ serait de :

$$d \approx \frac{\lambda_0}{6,86}, \tag{III.17}$$

soit des particules environ 7 fois plus petites que la longueur d'onde incidente. Malgré des pertes relativement importantes ($\tan(\delta) \simeq 5\%$), $LiTaO_3$ semble ainsi avoir de bonnes propriétés pour l'élaboration

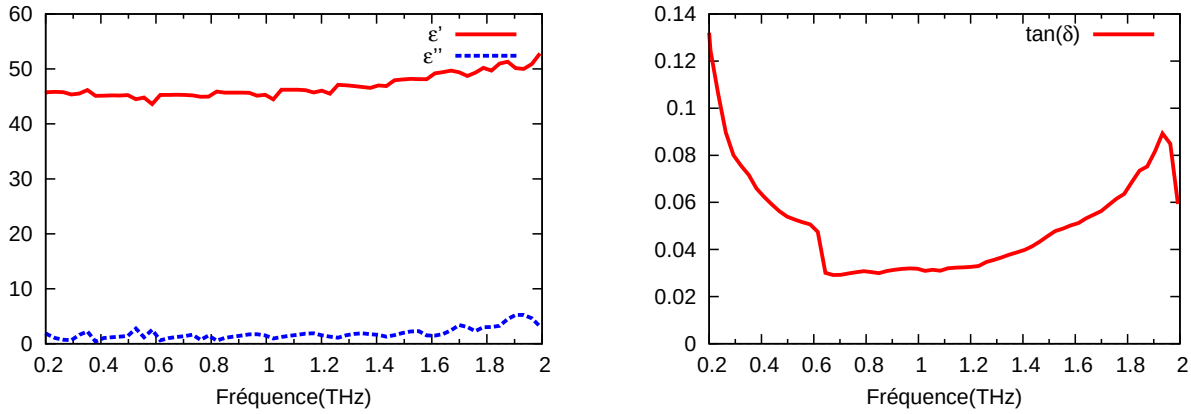

FIGURE III.11 – Permittivité diélectrique (à gauche) et pertes (à droite) de $LiTaO_3$ en fonction de la fréquence en THz, mesurées au LOMA.

d'un matériau à perméabilité négative.

III.1.3-e Dioxyde de Titane (TiO_2)

TiO_2 est un matériau pouvant se trouver sous trois formes cristallines à température ambiante et pression atmosphérique : rutile, anatase ou brookite. La forme rutile est la forme stable, les deux autres sont méta-stables. La forme anatase est stable à basse température et se transforme en rutile à haute température. La forme brookite est difficile à obtenir et peu étudiée [102]. Sous la forme rutile, TiO_2 adopte une structure cristalline tétragonale et présente ainsi une permittivité anisotrope [103].

Données expérimentales Nous possédons trois séries de mesures effectuées par différentes équipes pour ce matériau. Les premières données proviennent des équipes de P.H. Bolívar et H. Kurz [104]. Un cristal de TiO_2 a été étudié par spectroscopie térahertz résolue en temps à l'échelle picoseconde (THz-TDS), associée à un cryostat pour l'étude de la dépendance en température. Ni La forme cristalline, ni la méthode de fabrication du cristal ne sont explicitées dans la publication. Pour obtenir la fonction diélectrique, la transmittance d'un échantillon d'épaisseur $d = 1000 \pm 2\mu$m est mesurée. La FIGURE III.12 présente les résultats obtenus par ce groupe entre 0,2 et 0,8 THz (au-dessus de 0,8 THz, l'échantillon est optiquement épais et la transmission est nulle).

Le second jeu de données est issu des travaux de Matsumoto et al. [105]. Ces chercheurs ont mesuré la permittivité d'un cristal rutile de TiO_2 par spectroscopie térahertz dans le domaine temporel (THz-TDS). Les résultats de la mesure pour un monocristal de rutile et un polycristal sont présentés sur la FIGURE III.13. Dans la forme polycristalline de TiO_2, les orientations cristallines sont aléatoires et la permittivité mesurée est une moyenne des contributions parallèles et perpendiculaires. On remarque sur cette figure que la partie réelle de la permittivité est plus élevée dans le cas du polycristal accompagné par une partie imaginaire elle aussi plus élevée. Les résultats pour un monocristal concordent bien avec les résultats du groupe P. H. Bolívar et H. Kurz, ce qui permet de supposer, que les mesures de ces derniers étaient également réalisées sur un monocristal de rutile.

Les dernières mesures ont été effectuées par nos collaborateurs du LOMA sur un monocristal de TiO_2 cristallisé sous forme rutile et de $1,48$ mm d'épaisseur, par spectroscopie térahertz en transmission dans le domaine temporel (THz-TDS). Les mesures ont été effectuées en faisant varier l'orientation du cristal

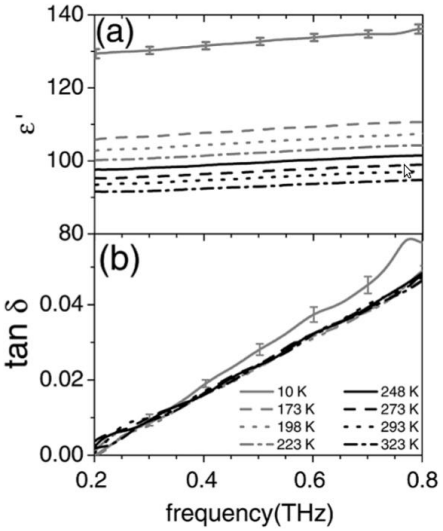

FIGURE III.12 – Mesures de la permittivité réelle ε' et des pertes $\tan(\delta)$ de TiO_2 en fonction de la température selon la référence [104].

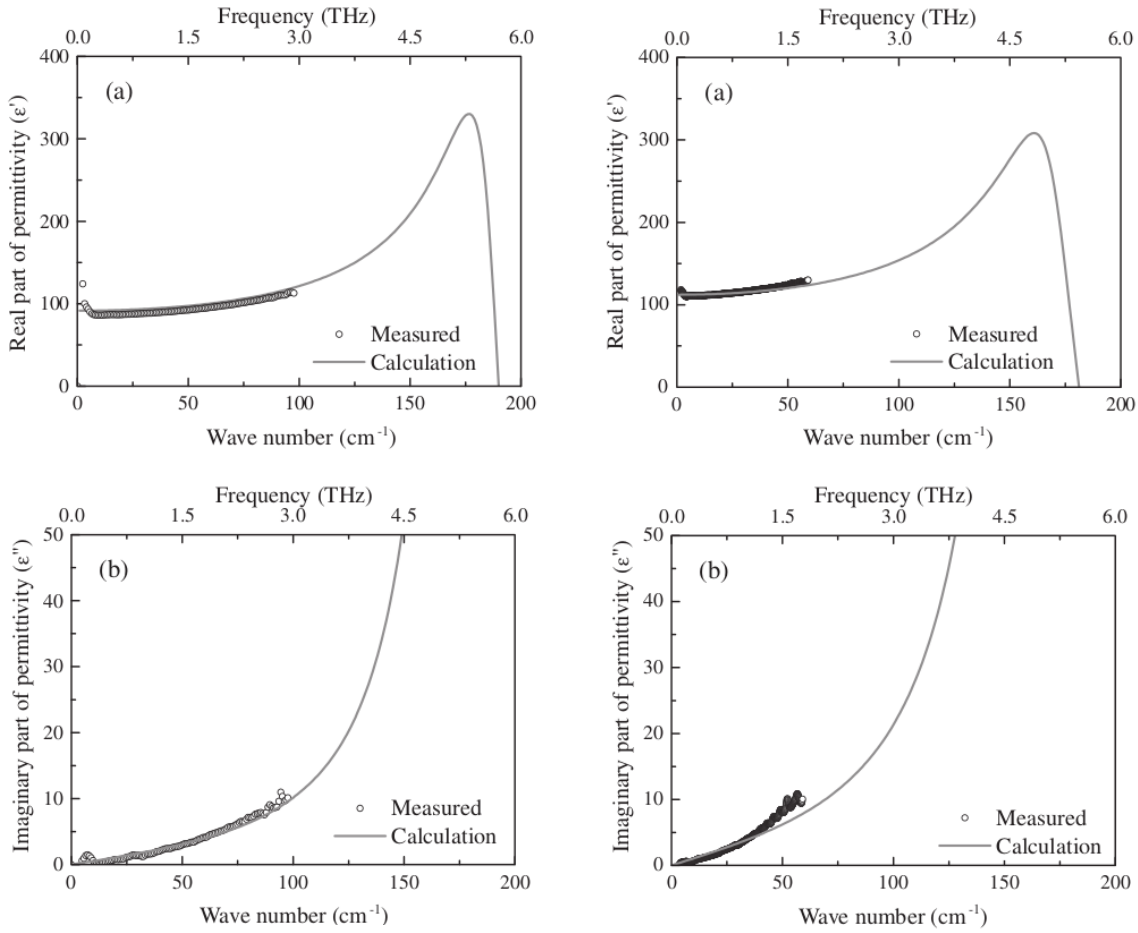

FIGURE III.13 – Permittivité diélectrique d'un monocristal (gauche) et d'un polycristal (droite) mesurée par THz-TDS dans [105].

de 0 à 90 degré et sont présentés sur la FIGURE III.14. Pour une orientation de 30 degré, le résultat

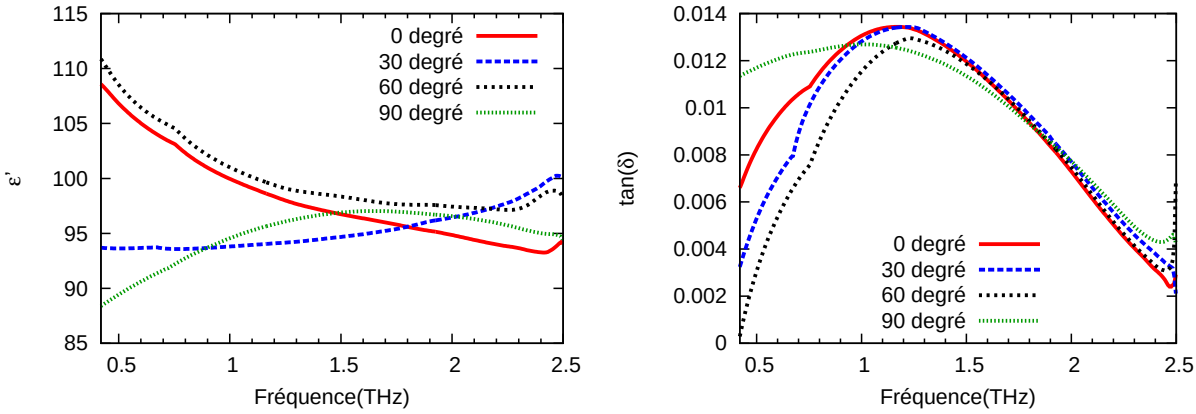

FIGURE III.14 – Permittivité diélectrique (à gauche) et pertes tan(δ) (à droite) d'un monocristal de TiO_2 mesurée par THz-TDS par nos collaborateurs du LOMA, pour différentes orientations du cristal.

concorde bien avec les résultats des mesures précédentes.

Conclusions En choisissant la situation la moins favorable ; c'est à dire en prenant pour la permittivité la plus petite des valeurs ($\mathrm{Re}(\varepsilon_p^{'}) = 94$), la taille des résonateurs à la résonance pour TiO_2 vaudrait :

$$d \approx \frac{\lambda_0}{9,69} \tag{III.18}$$

c'est à dire, des particules environ 10 fois plus petites que la longueur d'onde incidente. Ainsi, avec des pertes faibles et une très grande perméabilité dans tout le domaine térahertz, TiO_2 semble être un très bon candidat pour l'élaboration d'un matériau à permittivité négative.

III.1.3-f Conclusion générale

Choix des matériaux Pour résumer nos conclusions, nous avons dressé le TABLEAU récapitulatif III.2. Sur ce tableau, on se rend compte que les propriétés remarquables (haute permittivité et faibles pertes)

Matériau	ε'		ε''	
BST [97]	>100	ok	<50	×
MgO	10	×	$< 2,25$	ok
$MgTiO_3$ [100]	23	≈	0.575	ok
$LiTaO_3$	45	ok	2,25	ok
TiO_2 [104, 105]	94	ok	2,35	ok

TABLEAU III.2 – Tableau récapitulatif des matériaux diélectriques possédant les propriétés diélectriques requises pour etre de bons résonateurs dans le térahertz.

des céramiques ferroélectriques (MgO, BST , $MgTiO_3$) dans le micro-onde, changent drastiquement dans la gamme térahertz. Ces matériaux ne sont plus de « bons »diélectriques dans cette gamme de fréquence.

Nous pouvons essentiellement retenir trois matériaux pour la réalisation d'un milieu à permittivité négative. Parmi ceux-ci, TiO_2, deja utilisé pour des applications dans le THz [106, 60, 107], qui concilie une grande permittivité réelle et peu de pertes, semble le plus prometteur. En deuxième position, $LiTaO_3$, avec une permittivité moyenne mais des pertes de l'ordre de 5%, semble aussi avoir les propriétés suffisantes pour créer un métamatériau à perméabilité négative. $MgTiO_3$ se situe à la limite des matériaux envisageables.

III.2 Prédictions analytiques pour l'obtention de matériaux magnétiques

Dans cette section, nous étudions la perméabilité effective de métamatériaux réalisé à partir des matériaux constitutifs discutés dans le chapitre précédent. Nos prédictions sont basées sur la théorie analytique de Maxwell Garnett étendue, expliquée dans le chapitre II et donnée par :

$$\mu_{\text{eff}} = \mu_{\text{h}} \frac{\tau^3 + 3ifb_1}{\tau^3 - \frac{3}{2}ifb_1} \tag{III.19}$$

L'un des objectifs principaux de ce travail était de fournir à nos collaborateurs chimistes des abaques destinées à guider les synthèses chimiques (tailles, concentration des particules résonantes à produire, selon le matériau constitutif choisi et la fréquence de travail).

III.2.1 Prédictions analytiques pour $MgTiO_3$

III.2.1-a Calcul de la perméabilité effective

Dans ce paragraphe, nous appliquons les résultats obtenus dans la section II.2.4 à un métamatériau composés de sphères diélectriques de $MgTiO_3$ incluses dans un milieu hôte de paramètres $\varepsilon_{\text{h}} = \mu_{\text{h}} = 1$. Pour les calculs avec la théorie de Maxwell Garnett, nous avons utilisé un ajustement (par régression linéaire) des permittivités des FIGUREs III.9 et III.10 pour des fréquences comprises entre 0,2 THz (6,67 cm^{-1}) et 3 THz (100 cm^{-1}). Les équations des courbes utilisées sont (avec ν la fréquence en THz) :

$$\varepsilon_{\text{p}}^{'} = 0,41 \cdot \nu + 22,12$$
$$\varepsilon_{\text{p}}^{''} = 0,0206 \cdot \nu^2 + 1,1137\nu - 0,0221$$

et les résultats sont présentés sur la FIGURE III.15. Nous avons utilisé l'équation (II.60) pour calculer la perméabilité effective d'un tel métamatériau. Les pertes étant forte ($\tan\delta > 5\%$) pour des fréquences supérieures à 700 GHz, nous avons choisi de ne présenter les résultats de Maxwell Garnett que pour des fréquences inférieures.

Nous montrons sur la FIGURE III.16 un cas typique de perméabilité effective calculée à partir de la formule de Maxwell Garnett étendue (III.19) pour un milieu composite composé de telles sphères de rayon $r = 105\,\mu\text{m}$.

La perméabilité présente une allure caractéristique d'une résonance, avec pour la courbe réelle, une région de fort magnétisme (positif) aux alentours de 260GHz et une région de perméabilité négative entre 290 et 305GHz. Nous avons aussi reporté sur ce graphe le paramètre de Mie (échelle du haut sur la figure). En comparant à la FIGURE III.17, nous vérifions que l'approximation dipolaire est bien valide dans l'ensemble de cette gamme de fréquence : on observe que pour $MgTiO_3$ le coefficient dipolaire

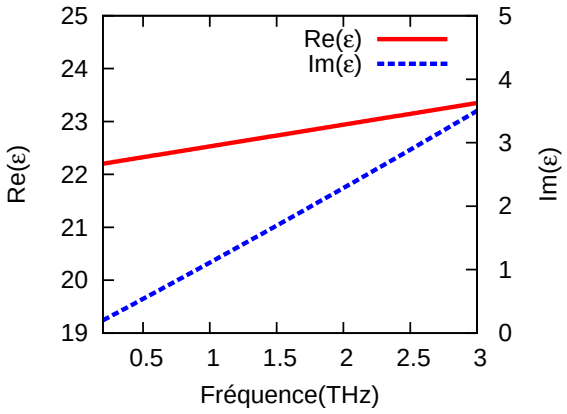

FIGURE III.15 – Ajustement de la permittivité de $MgTiO_3$ mesurée dans [100], et utilisé dans nos calculs.

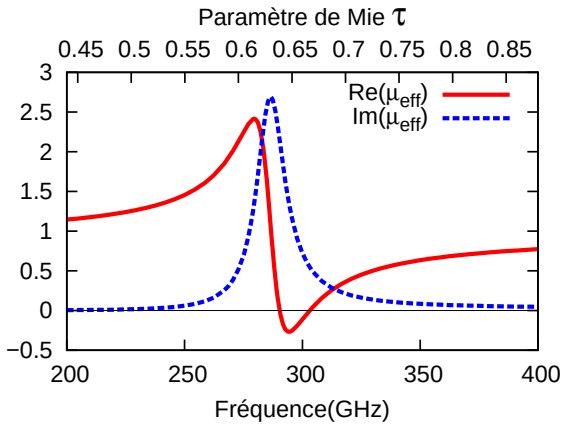

FIGURE III.16 – Perméabilité effective calculée avec la formule de Maxwell Garnett étendue pour des particules de $MgTiO_3$ de rayon $r = 105$ µm et fraction volumique $f = 0.2$.

magnétique b_1 et dipolaire électrique a_1 ont des amplitudes de plusieurs ordres de grandeurs plus élevées que les coefficients quadrupolaires b_2 et a_2.

III.2.1-b Abaque pour la synthèse chimique

Pour guider le travail de nos collaborateurs chimistes, nous avons calculé à leur demande une abaque indiquant les rayons et les fractions volumiques requises pour obtenir une perméabilité négative à une fréquence de travail donnée. Cette abaque est représentée sur la FIGURE III.18. Une ligne sur la figure représente la valeur $\mathrm{Re}(\mu_{\mathrm{eff}}) = 0$ (centre de la résonance) ; à l'intérieur de la courbe, la perméabilité est négative et en-dehors, positive. Différentes fréquences sont considérées. Pour avoir $\mathrm{Re}(\mu_{\mathrm{eff}}) < 0$ à 400 GHz, on peut par exemple prendre des sphères de 80 µm de rayons à une fraction volumique supérieure à 20 %. Nous remarquons que lorsque l'on se déplace vers des fréquences plus élevées, la fraction volumique nécessaire pour obtenir la perméabilité négative est plus importante. Cela s'explique par le fait que les pertes croissent avec la fréquence pour $MgTiO_3$ et donc, que la quantité minimale de résonateurs nécessaire pour obtenir $\mathrm{Re}(\mu_{\mathrm{eff}})$ négatif est plus élevée. Pour conclure sur $MgTiO_3$, on peut dire qu'il se place vraiment à la limite des matériaux envisageables, car en plus d'avoir à la résonance des particules

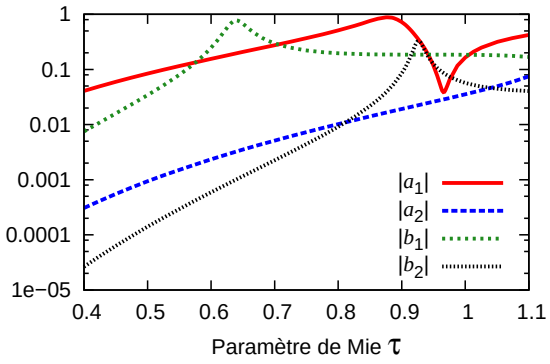

FIGURE III.17 – Amplitude des coefficients de Mie pour une sphère diélectrique de $MgTiO_3$ de permittivité $\varepsilon = 23 + 0.3i$.

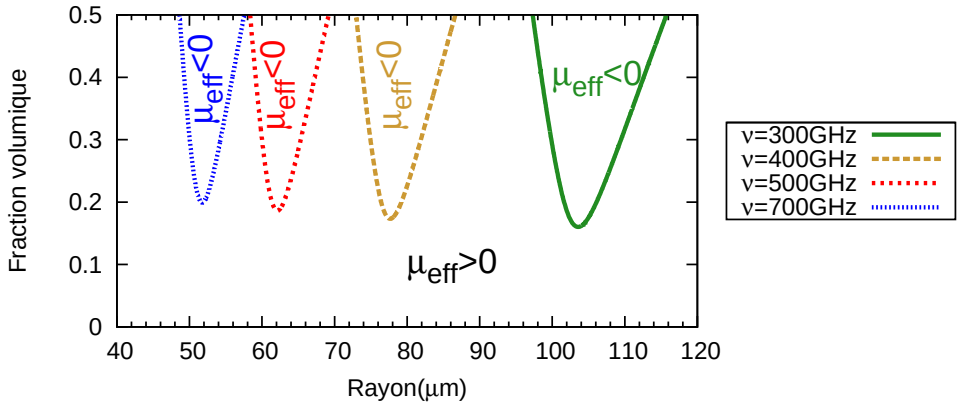

FIGURE III.18 – Abaque pour $MgTiO_3$ montrant la zone de perméabilité négative (à l'intérieur de la courbe) en fonction de la fraction volumique et du rayon des particules.

de tailles légèrement inférieures à la longueur d'onde (τ relativement élevé à la résonance), il faut pour obtenir une perméabilité négative des fractions volumiques minimales de l'ordre de 20%, soit des valeurs déjà élevées pour la fabrication du matériau.

III.2.2 Prédictions analytiques pour $LiTaO_3$

III.2.2-a Calcul de la perméabilité effective

Dans ce paragraphe, nous appliquons de nouveau, les résultats obtenus dans la section II.2.4 à un métamatériau composés de sphères diélectriques de $LiTaO_3$ incluses dans un milieu hôte de paramètres $\varepsilon_h = \mu_h = 1$. Nous avons procédé à un ajustement (par régression linéaire) de la permittivité du $LiTaO_3$ dont les mesures expérimentales ont été présentées à la section précédente(FIGURE III.19). Les équations des droites après ajustement en fonction de la fréquence ν (en THz) sont les suivantes :

$$\begin{aligned} \varepsilon_p^{'} &= 2,19 \cdot \nu + 43,45 \\ \varepsilon_p^{''} &= 1,62 \cdot \nu + 0,41 \end{aligned} \tag{III.20}$$

Comme précédemment, nous avons utilisé l'équation (II.60) pour calculer la perméabilité effective d'un tel métamatériau. Nous montrons sur la FIGURE III.20 un cas typique de perméabilité effective pour un

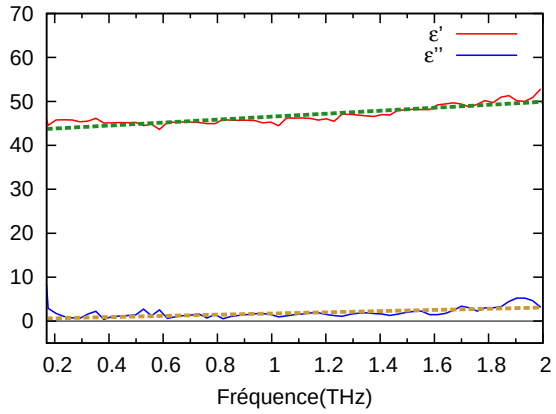

FIGURE III.19 – Régression linéaire des points expérimentaux de la figure III.11 (selon l'ajustement de l'équation (III.20)).

milieu composite composé de telles sphères de rayon $r = 45\,\mu$m. La perméabilité présente, dans ce cas aussi, l'allure caractéristique d'une résonance, avec pour la courbe réelle, une région de fort magnétisme (positif) aux alentours de 470GHz et une région de perméabilité négative entre 480 et 510GHz.
En comparant les FIGURES III.20 et III.21, nous vérifions là aussi, que l'approximation dipolaire est bien

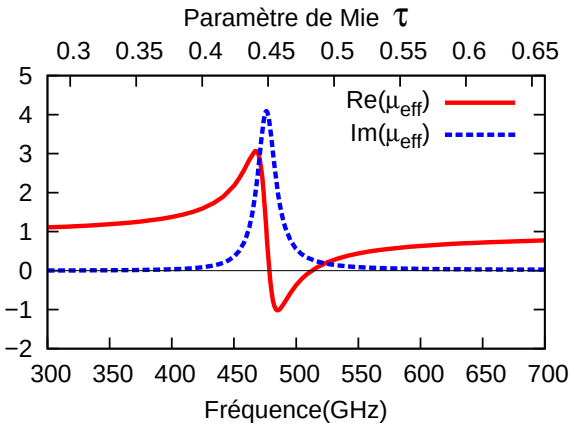

FIGURE III.20 – Perméabilité effective calculée avec la formule de Maxwell Garnett étendue pour des particules de $LiTaO_3$ de rayon $r = 45\,\mu$m et fraction volumique $f = 0.2$.

valide dans l'ensemble de cette gamme de fréquence : b_1 et a_1 ont des amplitudes de plusieurs ordres de grandeurs plus élevées que b_2 et a_2.

III.2.2-b Abaque pour la synthèse chimique

Pour guider le travail de nos collaborateurs chimistes, nous avons calculé le même type d'abaque que pour $MgTiO_3$ indiquant les rayons et les fractions volumiques requises pour obtenir une perméabilité négative à une fréquence de travail donnée. Cette abaque est représentée sur la FIGURE III.22. Comme précédemment, une ligne sur la figure représente la valeur $\mathrm{Re}(\mu_{\mathrm{eff}}) = 0$ (centre de la résonance) ; à l'intérieur de la courbe, la perméabilité est négative et en-dehors, positive. Là aussi, nous remarquons que la fraction volumique minimale pour obtenir μ_{eff} négatif augmente avec la fréquence et donc avec les

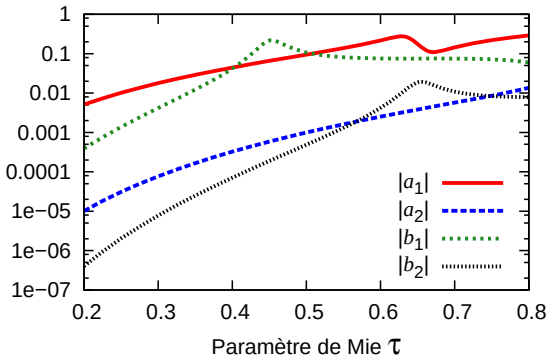

FIGURE III.21 – Amplitude des coefficients de Mie pour une sphère diélectrique de $LiTaO_3$ de permittivité $\varepsilon = 47 + 2,8i$.

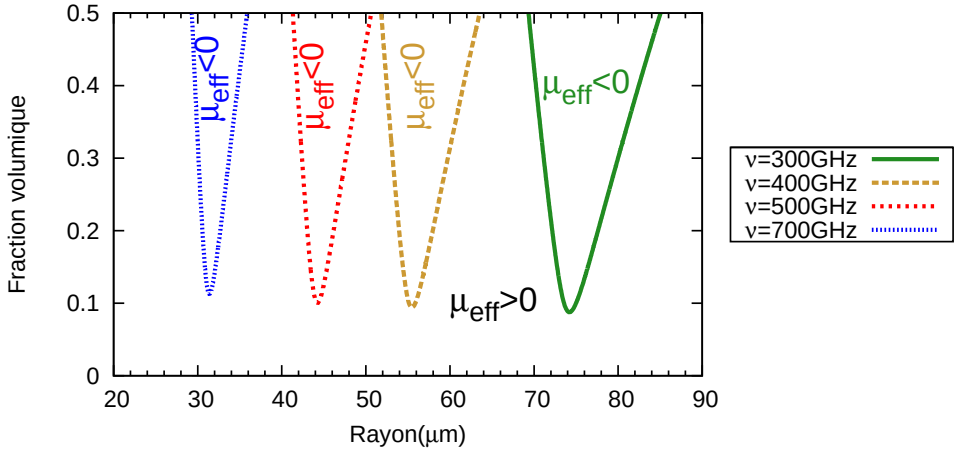

FIGURE III.22 – Abaque pour $LiTaO_3$ montrant la zone de perméabilité négative (à l'intérieur de la courbe) en fonction de la fraction volumique et du rayon des particules.

pertes. Selon ces documents, il faut pour $LiTaO_3$ au moins 10 % en fraction volumique pour obtenir une perméabilité négative. Dans ces conditions, et avec un paramètre de Mie à la résonance de l'ordre de $\tau = 0.45$, $LiTaO_3$ reste un bon candidat pour la réalisation pratique de métamatériau à perméabilité négative.

III.2.3 Prédictions analytiques pour TiO_2

III.2.3-a Calcul de la perméabilité effective

Dans cette section, nous appliquons les résultats obtenus dans la section II.2.4 à un métamatériau composés de sphères diélectriques de TiO_2 incluses dans un milieu hôte de paramètres $\varepsilon_h = \mu_h = 1$. Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, ce matériau sous sa forme rutile donne une réponse diélectrique anisotrope. Cependant, ce comportement ne pose pas de problème puisque l'on remarque, à partir des résultats de la FIGURE III.13, que la permittivité d'un polycristal de TiO_2 est plus élevée que celle d'un monocristal. Nous avons ainsi choisi parmi les résultats expérimentaux, la situation la plus défavorable qui correspond à la permittivité mesurée dans [104], pour modéliser la réponse diélectrique du TiO_2. L'ajustement de la permittivité mesurée dans [104] et utilisé dans nos calculs de milieu effectif

est représenté sur la FIGURE III.23. Les équations des courbes issues de l'ajustement en fonction de la

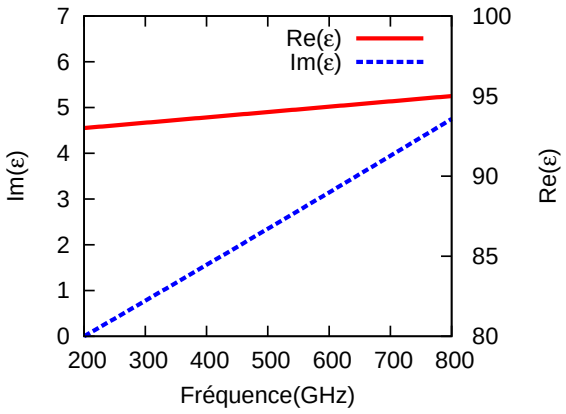

FIGURE III.23 – Permittivité de TiO_2 mesuré dans [104] et utilisée dans nos calculs.

fréquence ν (en THz) sont :

$$\varepsilon_p^{'} = 3,33 \cdot \nu + 92,34 \tag{III.21}$$

$$\varepsilon_p^{''} = 0,28 \cdot \nu^2 + 7,64 \cdot \nu - 1,54 \tag{III.22}$$

Nous utilisons une nouvelle fois l'équation (II.60) pour calculer la perméabilité effective d'un tel métamatériau. Les pertes augmentant fortement avec la fréquence, nous avons choisi de ne présenter les résultats de Maxwell Garnett que pour fréquences inférieures à 500 GHz. Nous montrons sur la FIGURE III.24 un cas typique de perméabilité effective pour un milieu composite composé de telles sphères de rayon $r = 50\,\mu m$.
Là aussi, la perméabilité présente une allure caractéristique d'une résonance, avec pour la courbe réelle, une région de fort magnétisme (positif) aux alentours de 290GHz et une région de perméabilité négative entre 305 et 315GHz. Les conclusions sont les mêmes que pour les matériaux précédents et là aussi en

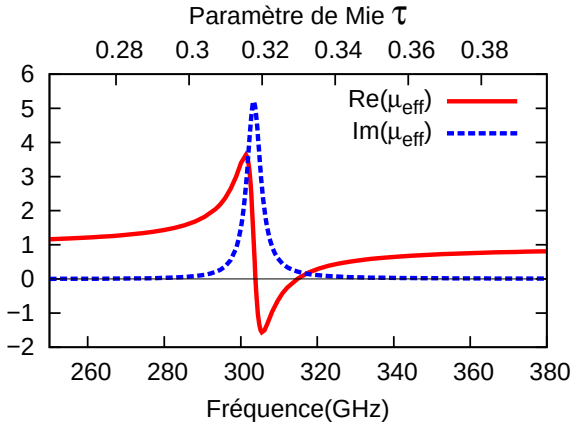

FIGURE III.24 – Perméabilité effective calculée avec la formule de Maxwell Garnett étendue pour des particules de TiO_2 de rayon $r = 50\,\mu m$ et fraction volumique $f = 0.09$.

comparant à la FIGURE III.25 on observe que le régime dipolaire est bien valide.

En prévision des résultats de la partie suivante, dans laquelle nous considérerons uniquement le TiO_2,

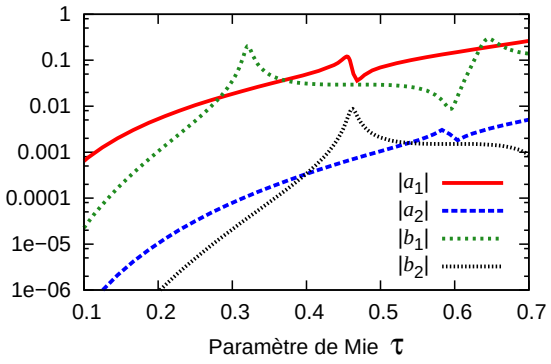

FIGURE III.25 – Amplitude des coefficients de Mie pour une sphère diélectrique de TiO_2 de permittivité $\varepsilon = 94 + 2,35i$ (peut etre changer cette valeur pour prendre celle a 300 GHz).

nous montrons aussi les résultats de la théorie de Maxwell Garnett pour la permittivité, l'indice et l'impédance sur la FIGURE III.26

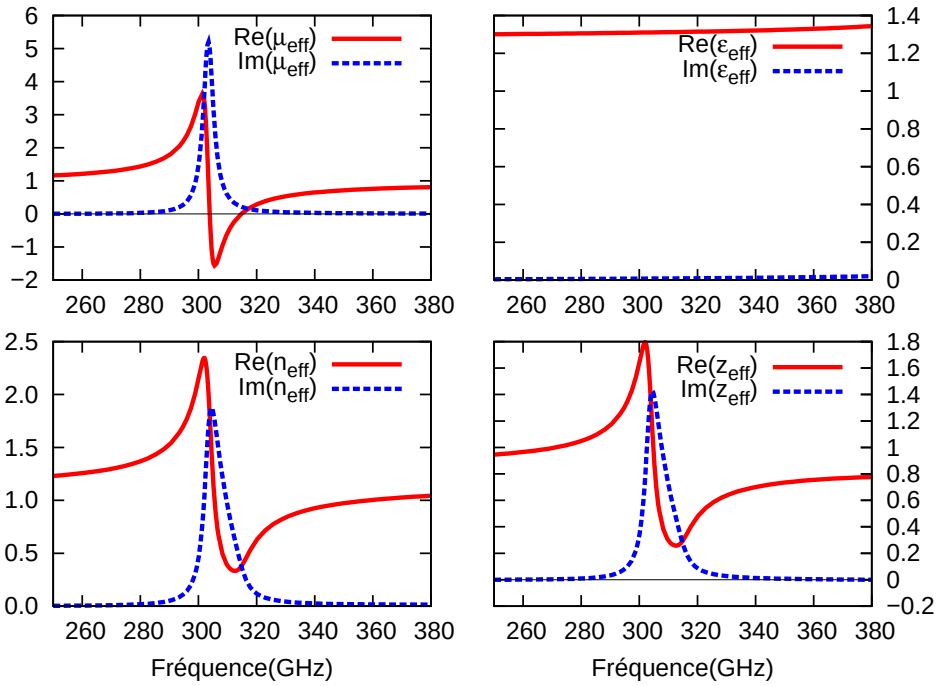

FIGURE III.26 – Perméabilité, permittivité, indice et impédance effective calculée avec la formule de Maxwell Garnett étendue pour des particules de TiO_2 de rayon $r = 50\,\mu m$ et fraction volumique $f = 0.09$.

III.2.3-b Abaque pour la synthèse chimique

De même que pour les autres matériaux, nous avons calculé une abaque pour guider le travail de nos collaborateurs chimistes. Cette abaque est représentée sur la FIGURE III.27. Encore une fois, nous remarquons que la fraction volumique minimale pour obtenir μ_{eff} négatif augmente légèrement avec la fréquence et cela à cause d'un niveau de pertes croissant avec la fréquence. Selon ce document, la fraction volumique minimale pour obtenir une permittivité négative est inférieure à 5 %. Dans ces conditions, et avec un paramètre de Mie à la résonance de l'ordre de $\tau = 0.32$, TiO_2 est un très bon candidat pour la

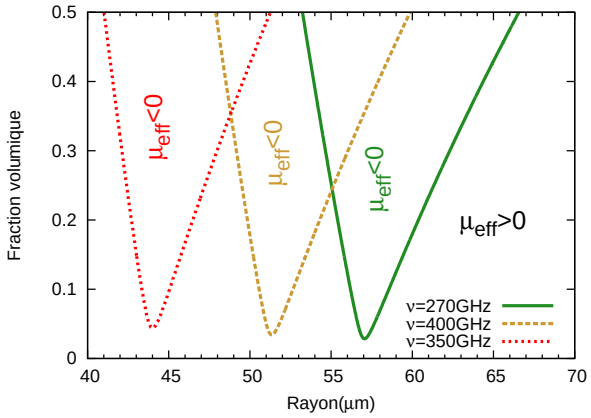

FIGURE III.27 – Abaque pour TiO_2 montrant la zone de perméabilité négative (à l'intérieur de la courbe) en fonction de la fraction volumique et du rayon des particules.

réalisation pratique de métamatériau à perméabilité négative.

III.2.4 Effet de la permittivité du milieu-hôte

Jusqu'à présent, nous avons discuté les résultats obtenus en considérant un milieu hôte de permittivité $\varepsilon_h = 1$, ce qui signifie que toutes les courbes présentées dans ce document ont été réalisées pour des particules sphériques dispersées dans le vide. Évidemment, pour la réalisation pratique de ces métamatériaux, nous devrons choisir un matériau pour le milieu-hôte de permittivité ε_h différente de 1. Pour comprendre l'influence d'un tel changement, sur la figure III.28, ont été tracés les zones de perméabilité négative quand ε_h varie (nous avons pris l'exemple du TiO_2 à une fréquence de $\nu = 270\,GHz$). On con-

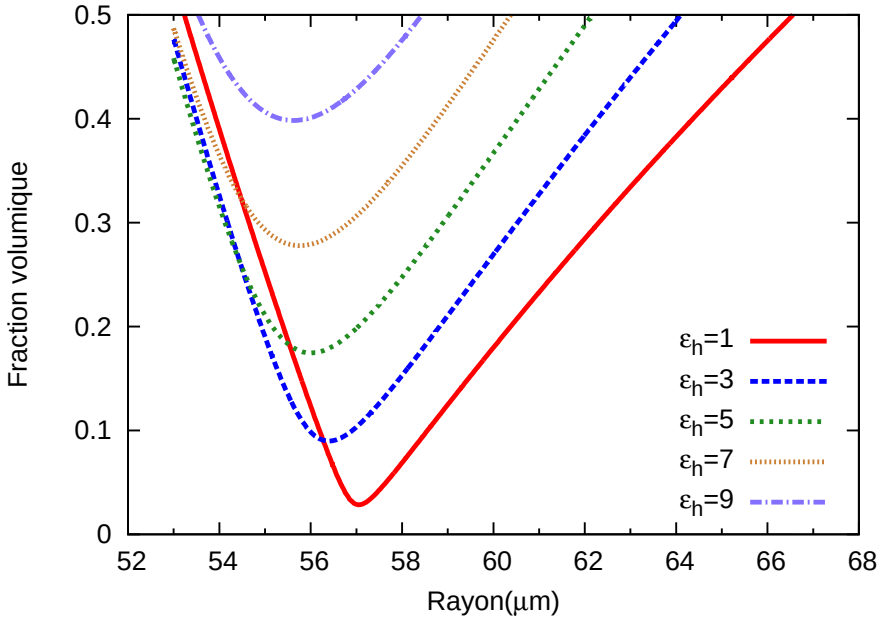

FIGURE III.28 – Variation des contours des régions de perméabilité négative lorsque le milieu-hôte change (variations de ε_h), dans le cas du TiO_2 à une fréquence de $\nu = 270\,GHz$.

state que plus le contraste entre la permittivité du milieu-hôte et celle des particules est important, plus la fraction volumique nécessaire pour obtenir la permittivité négative est faible.
Autrement dit, plus le contraste particules/milieu-hôte est grand, plus les zones de perméabilité négative sont étendues et profondes. On peut noter qu'en revanche, une variation de ε_h n'entraîne pas de déplacement de la résonance en termes de rayon des particules devant être utilisées pour travailler à une fréquence donnée.

III.2.5 Conclusions

Nous avons ainsi vu dans cette section, les résultats de la théorie de Maxwell Garnett étendue lorsqu'on l'applique à des résonateurs diélectriques dans le térahertz. La perméabilité calculée présente une résonance dont la position fréquentielle dépend de la partie réelle de l'indice, et du ratio entre rayon et longueur d'onde (équation (III.6)). L'amplitude de la résonance dépend, quant à elle, du contraste entre la permittivité des particules et du milieu hôte, de la fraction volumique, et enfin des pertes (partie imaginaire de l'indice).
Finalement, nous souhaitons insister sur les limitations théoriques auxquelles sont soumises ces calculs : toutes les prédictions présentées ici sont fondées sur la théorie de Maxwell Garnett étendue, discutée au paragraphe II.2.4-d, et dont la validité n'est vérifiée que pour des particules suffisamment petites vis-à-vis de la longueur d'onde incidente, et des fractions volumiques faibles ($< 20\%$). Enfin, nous rappelons que nous nous sommes limités dans les calculs au cas de particules résonantes parfaitement sphériques et de taille parfaitement définie. Ces aspects devront être repris à plus long terme pour d'écrire correctement les milieux réels auto-assemblés.

III.3 Simulations numériques par éléments finis

Dans cette partie, nous allons utiliser l'outil de simulations numériques décrit au paragraphe II.3, pour vérifier de manière numérique les fréquences, amplitude et forme des résonances analytiques de la partie précédente. Comme nous l'avons signalé dans le chapitre précédent, la relation de Clausius Mossotti et la théorie de Maxwell Garnett qui en découle, décrivent correctement des arrangements cubiques à faible fraction volumique. Dans cette partie, nous allons dans un premier temps vérifier l'accord entre les résultats analytiques et des simulations numériques dans ces conditions, puis nous verrons ensuite l'effet d'une augmentation de la fraction volumique et d'un changement de réseau.

III.3.1 Arrangement cubique

Dans cette partie, nous avons utilisé HFSS pour simuler un arrangement cubique tri-dimensionnel de sphères de TiO_2 de 50 µm de rayon dans le vide. La permittivité utilisée pour les simulations est celle du issu de l'ajustement (V.6) de la section précédente. Comme nous l'avons expliqué auparavant, la structure utilisé dans ces simulations est rendue infinie suivant les deux directions perpendiculaires à la direction de propagation grâce à l'utilisation conditions aux limites appropriées (cf section II.3.2). Il nous reste à choisir le nombre de couches de sphères suivant la direction de propagation. Un exemple de structure simulée avec 5 couches de sphères le long de la direction de propagation est montré sur la FIGURE III.29.

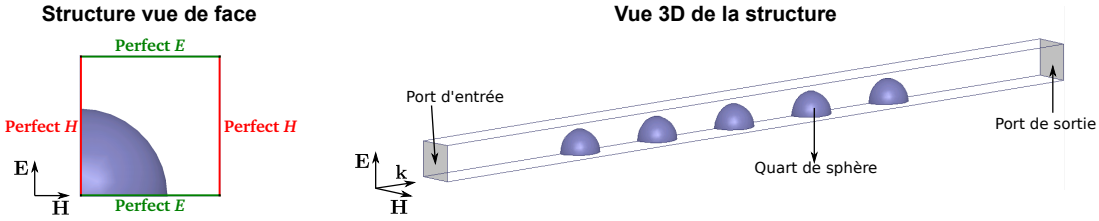

FIGURE III.29 – Structure de quarts de sphères utilisée pour les simulations dans HFSS. Les conditions aux limites Perfect *E* et Perfect *H* permettent de rendre la structure infinie suivant les directions de **E** et **H**.

III.3.1-a Influence de l'épaisseur du matériau (nombre de couches de sphères)

Pour être sûr que nous ne sommes pas confronté à un régime de "taille finie", nous avons effectué une série de simulations pour connaître l'effet du nombre de couches de sphères suivant la direction de propagation. Les simulations ont été effectuées en utilisant des sphères de TiO_2 de 50 µm de rayons concentrées à une fraction volumique de 9%. Avec ces paramètres la distance entre sphères est d'environ 180 µm. La perméabilité effective extraite grâce à la méthode de Nicholson-Ross suivie de la procédure d'extraction expliquée dans la section précédente, est représentée sur la FIGURE III.30 pour un nombre de sphères allant de 1 à 9. Les résultats de ces simulations sont strictement identiques pour un nombre de couches de sphères allant de 2 à 9. On observe une très légère différence d'amplitude de résonance dans le cas d'une seule couche. Ainsi, nous voyons que lorsque l'on travaille sur la perméabilité négative, le nombre de couche de sphères importe peu, pourvu que l'on utilise plus d'une couche lors de la simulation. Une interprétation possible d'un tel comportement est que le champ pénètre peu dans la structure à la résonance puisque lorsque μ est négatif le matériau se comporte comme un miroir magnétique, et, le nombre de couche de sphères n'intervient pas. C'est d'ailleurs ce que l'on observe effectivement quand

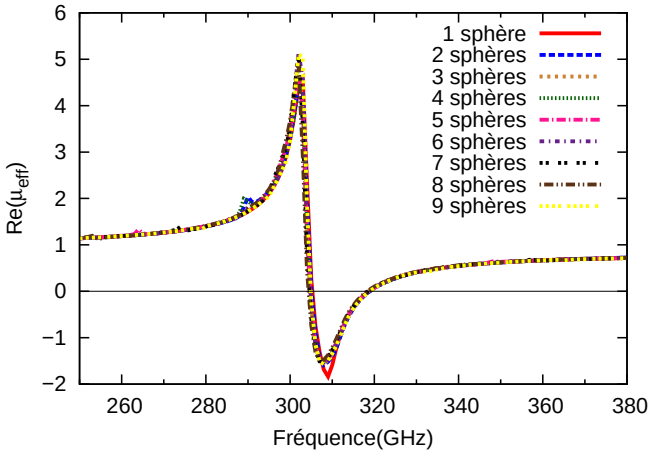

FIGURE III.30 – Influence du nombre de couches de sphères sur la perméabilité effective pour des sphères de 50 µm de rayons concentrées à une fraction volumique de 9%.

on visualise le champ électromagnétique dans la structure à la résonance (FIGURE III.31) pour différentes valeur de la phase totale Φ de l'onde. Ce résultat distingue le comportement de ce matériau de celui d'un cristal photonique pour lequel les effets sont dus à la périodicité du réseau et non aux propriétés de résonances intrinsèque des particules. Dans la suite, nous avons choisi dans la plupart des cas de travailler avec 5 couches de sphères.

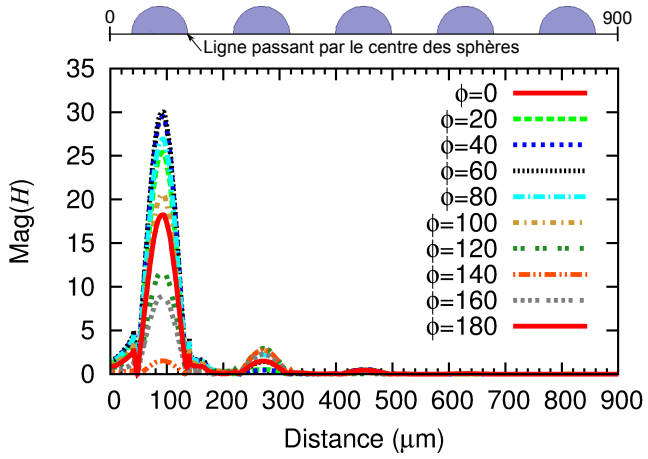

FIGURE III.31 – Amplitude du champ Magnétique en fonction de la distance en µm sur une droite passant par le centre des sphères à la fréquence de résonance à 309 GHz. Le champ a été tracé pour différentes valeurs de la phase totale Φ (en degré).

III.3.1-b Comparaison avec les prédictions analytiques pour un réseau cubique

Nous comparons ici les résultats issus de simulation numérique en utilisant un réseau cubique de sphères de TiO_2 avec une faible fraction volumique en TiO_2 ($f = 9\%$). Les résultats numériques sont extraits par la méthode de Nicolson-Ross ainsi que par la méthode de Scher.
Il est important de souligner qu'il existe une différence importante dans la manière dont nous obtenons les paramètres effectifs avec les différentes méthodes. En effet, les paramètres effectifs analytiques ε_{eff}, μ_{eff}

sont obtenus directement grâce à la formule (II.60). On peut ensuite obtenir l'indice et l'impédance effective de Maxwell Garnett en utilisant les formules (II.87).
Dans la méthode de Scher, la polarisabilité est obtenue grâce aux spectres de transmission et de réflexion d'une seule couche de sphères, puis les paramètres effectifs ε_{eff} et μ_{eff} sont calculés à partir de de formule de Clausius-Mossotti. L'indice et l'impédance sont ensuite déduits de la même manière que précédemment.
Enfin, dans la méthode de Nicolson-Ross, nous extrayons, à partir du spectre de transmission et de réflexion, l'indice et l'impédance effective, puis à l'aide des formules (II.87), nous en déduisons la permittivité et perméabilité effective.
Pour cette raison, nous avons comparé pour les trois méthodes, non seulement la permittivité et perméabilité effective, mais aussi l'impédance et l'indice effectif. Les résultats pour l'extraction de Scher sont montrés sur la FIGURE III.32, ceux pour l'extraction de Nicolson-Ross sur la FIGURE III.33.

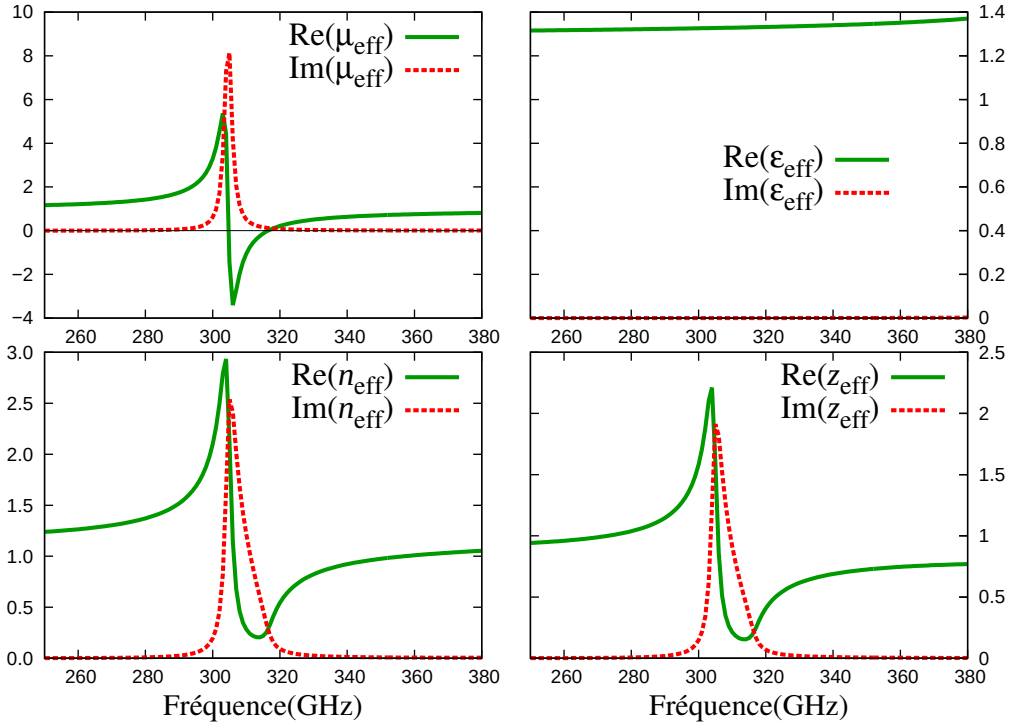

FIGURE III.32 – Paramètres effectifs extraits avec la méthode de Scher pour un arrangement cubique de sphères de TiO_2 de 50 µm de rayons et concentrées à une fraction volumique de 9%.

Enfin sur la FIGURE III.34, nous montrons la comparaison des parties réelles pour les 3 résultats. En comparant les parties réelles de l'impédance effective sur la FIGURE III.34, on remarque que les trois méthodes concordent bien, avec cependant une amplitude plus faible pour le résultat de la théorie de Maxwell Garnett. En ce qui concerne l'indice effectif, l'accord entre les résultats de MG et NRW est très bon alors que le résultat par la méthode de Scher prévoit une amplitude de résonance plus importante. Ces effets se répercutent sur la perméabilité effective, et on observe un très bon accord entre NRW et MG, un accord sur l'amplitude de résonance un peu moins bon avec la méthode de Scher. Malgré cette différence, l'accord entre les perméabilités simulées et calculées reste très bon. Les perméabilités issues de la simulation montrent les mêmes caractéristiques que celles obtenues par le calcul, notamment une zone négative.

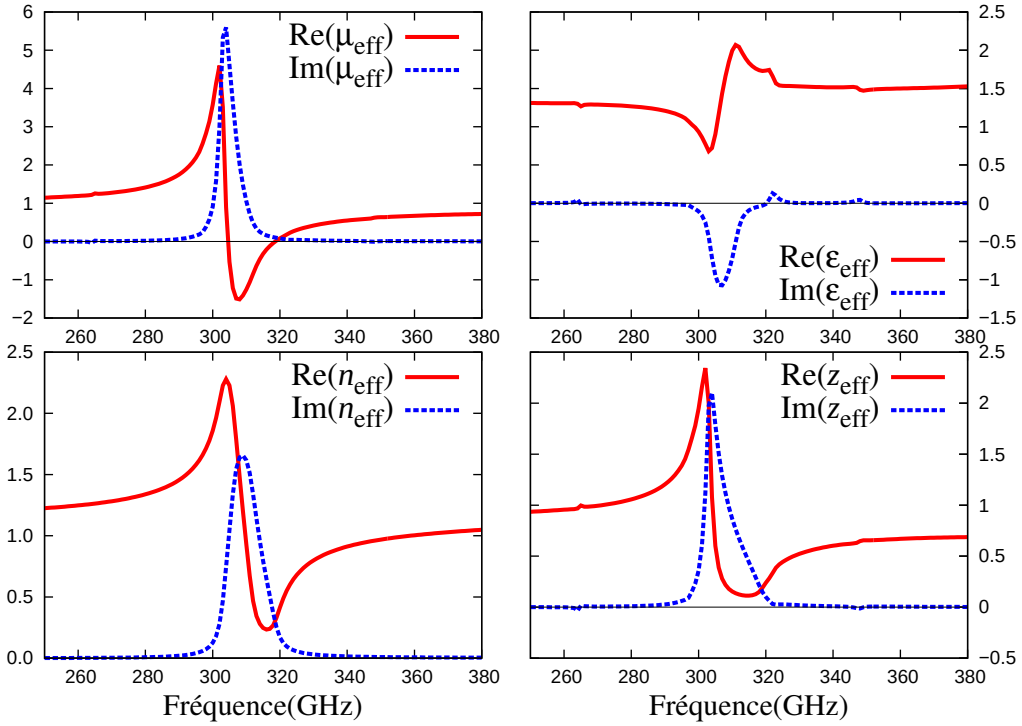

FIGURE III.33 – Paramètres effectifs extraits avec la méthode de Nicolson-Ross-Weir pour un arrangement cubique de sphères de TiO_2 de 50 µm de rayons et concentrées à une fraction volumique de 9%.

En ce qui concerne la permittivité effective, on remarque que la méthode de Scher concorde très bien avec le résultat de Maxwell Garnett. Le résultat extrait par la méthode NRW montre une résonance non prévue par le calcul de Maxwell Garnett. Cette résonance est souvent appelée « anti-résonance » car la partie décroissante est située à basse fréquence contrairement à la résonance magnétique. Cette anti-résonance a lieu à la même fréquence que la résonance en perméabilité et a été observé dans de nombreux travaux (par exemple [108, 109]) lors de l'extraction des paramètres effectifs avec cette méthode. En examinant la FIGURE III.33 on se rend compte que cette résonance de la partie réelle de la permittivité est accompagnée d'une partie imaginaire négative, violant ainsi la condition de passivité du milieu. On peut aussi remarquer dans l'impédance extraite par la méthode NRW qu'elle présente de très légers « pics parasites » aux alentours de 270 GHz et de 350 GHz. Ce artefacts, n'apparaissant pas dans l'extraction par la méthode de Scher (c.f. FIGURE III.32), sont typique des problèmes liés à l'extraction par la méthode NRW dont nous avons parlé dans la partie extraction [91].
Cependant dans la suite de ce chapitre, nous ne nous intéresserons qu'à la perméabilité effective et par conséquent, nous utiliserons dans la suite seulement la méthode NRW pour l'extraction des paramètres effectifs.

III.3.1-c Influence de la fraction volumique

Nous étudions maintenant l'effet de la fraction volumique sur la perméabilité effective et nous comparons avec les paramètres effectifs calculés à partir de la théorie de Maxwell Garnett. Les résultats numériques du calcul de la partie réelle de la perméabilité pour des réseaux cubiques à différentes fractions volumiques, sont comparés, à ceux du calcul par la théorie de Maxwell Garnett sur la FIGURE

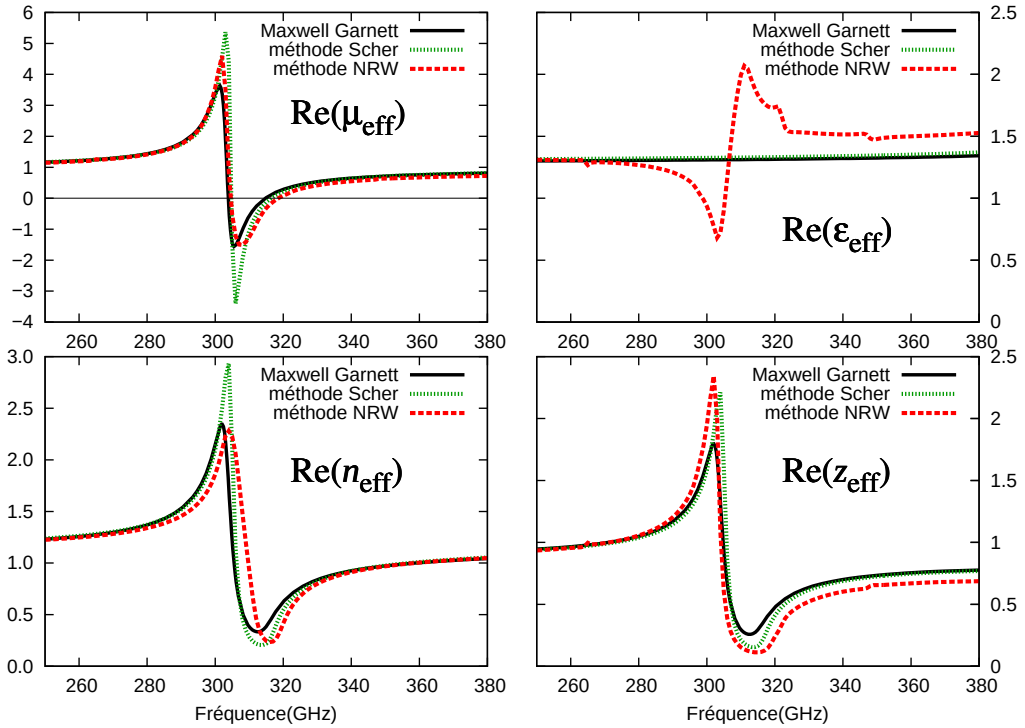

FIGURE III.34 – Comparaison des résultats analytiques et numériques de la partie réelle des paramètres effectifs, avec un arrangement cubique, pour des sphères de TiO_2 de 50 µm de rayons et concentrées à une fraction volumique de 9%.

III.35. Pour les fractions volumiques les plus faibles, nous observons un très bon accord entre les résultats analytiques et simulés. Pour des fractions volumiques de 20 et 30%, on se rend compte que la fréquence de résonance est bien prédite par les résultats analytiques, mais pas l'amplitude. Comme nous l'avons mentionné plus tôt, la théorie étendue de Maxwell Garnett perd sa validité à haute fraction volumique, en raison des phénomènes de couplage entre particules. Ce couplage est négligeable quand les particules sont loin les unes des autres (i.e. quand la fraction volumique est faible) mais devient important à hautes fractions volumiques (voir l'étude de Wheeler dans [110]). On peut donc dire que le bon accord (relatif) observé ici entre théorie de Maxwell Garnett et simulation par éléments finis est plutôt une bonne surprise.

III.3.2 Effet de l'arrangement des particules

Comme nous l'avons expliqué auparavant, la théorie de Maxwell Garnett, basée sur celle de Clausius-Mossotti est seulement valide quand les contributions dues aux plus proches voisins s'annulent sur les noeuds du réseau, ce qui est le cas pour un réseau cubique. Cependant, nous avons aussi mentionné que les travaux de [81] démontrent que cette théorie est aussi valable pour un système désordonné pour lequel les positions entre particules sont décorrélées. Afin de vérifier cela, nous examinons ici l'effet de la répartition des particules dans le matériau sur la perméabilité effective. Ces travaux étant destinés à plus long terme à la modélisation de milieux auto-assemblés dans lesquels les particules peuvent être réparties de manière quasi périodique mais avec des fluctuations non négligeables, nous aurions aimé effectuer

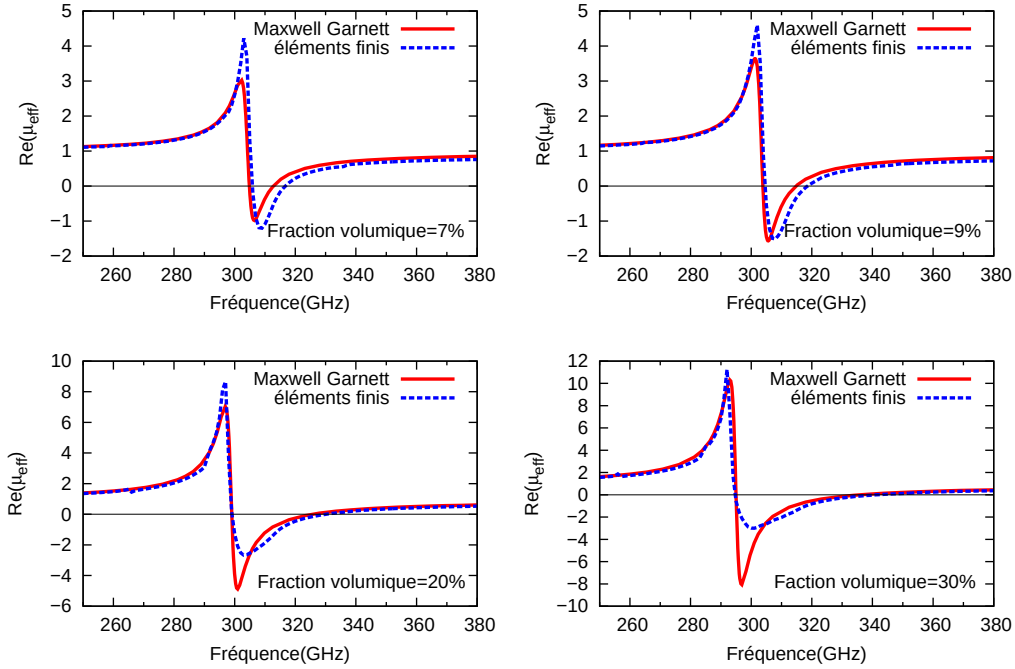

FIGURE III.35 – Comparaison de la partie réelle de la perméabilité effective pour des résultats analytiques et numériques avec un arrangement cubique (rayon des sphères 50 µm)

une simulation avec des sphères aléatoirement réparties dans un milieu-hôte et en extraire la perméabilité effective. Malheureusement, une simulation de ce type avec HFSS est actuellement impossible à cause de la taille de la matrice à inverser et, nous nous contenterons de simulations dans lesquelles les positions des particules seront fortement corrélées.
L'arrangement cristallin, ainsi que la polarisation de l'onde utilisés, sont paramétrés selon le schéma de la FIGURE III.36.

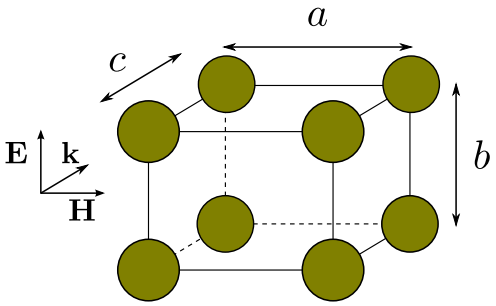

FIGURE III.36 – Définition des longueurs élémentaires suivant chaque direction cristalline par rapport à la polarisation de l'onde incidente utilisée.

La fraction volumique en utilisant ces paramètres a, b, c est :

$$f = \frac{4}{3}\frac{\pi \cdot r^3}{a \cdot b \cdot c} \tag{III.23}$$

Dans cette section nous étudions le comportement de la perméabilité effective quand les paramètres

a, b, c varient.
Afin d'avoir accès à l'effet de la répartition des particules uniquement, nous travaillons à fraction volumique constante. De plus, par souci de cohérence avec les résultats du paragraphe précédent, nous considérons des sphères de TiO_2 de 50 µm de rayon concentrées à une fraction volumique de 9% dans un milieu-hôte tel que $\varepsilon_h = 1, \mu_h = 1$. À cette fraction volumique et pour ces tailles de sphères, le réseau cubique correspond à des paramètres de maille $a = b = c \approx 180$ µm. Sur les différentes courbes présentées dans la suite, nous avons dans chacun des cas représenté les résultats pour un réseau cubique (ou de manière équivalente le résultat pour $a = b = c \approx 180$ µm), qui, d'après la FIGURE III.34, sont très proches de ceux de la théorie de Maxwell Garnett et permettent ainsi la comparaison avec celle-ci.

III.3.2-a Réseau orthorhombique

Nous étudions, dans un premier temps, l'effet d'un changement des paramètres de maille dans chaque direction cristalline, en simulant des réseaux orthorhombiques de fraction volumique constante. Un réseau orthorhombique est un réseau orthogonal dont les paramètres de maille vérifient : $a \neq b \neq c$. Les résultats présentés sur les FIGURES III.37, III.38, III.39, montrent l'évolution de la perméabilité quand le réseau change, en gardant un des paramètres constant. Il est difficile de déterminer exactement

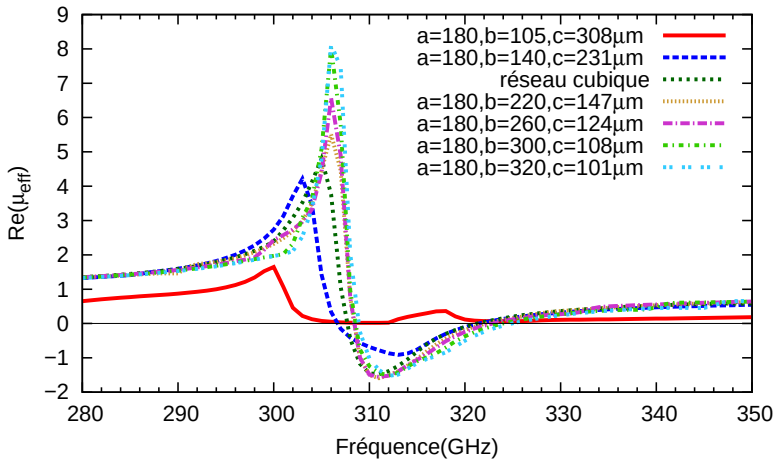

FIGURE III.37 – Comportement de la partie réelle de la perméabilité effective avec une fraction volumique de 9% pour des réseaux orthorhombique en gardant a constant.

l'influence de chaque paramètre de maille dans l'allure de la perméabilité effective, car les paramètres a, b, c n'évoluent pas de manière indépendante (à cause de la condition de fraction volumique constante). Cependant, on peut extraire des comportements généraux au vu de ces courbes.
On remarque que dans le cas où a est constant et que b et c sont modifiés (FIGURE III.37), la position de la zone négative ne change pas. De plus, on remarque que lorsque a augmente (FIGURES III.38, III.39 avec b et c donnés par les légendes), la zone de résonance se déplace vers les hautes fréquences.
Pour ce qui est de c, on se rend compte que lorsqu'il est constant (FIGURE III.39), l'amplitude de résonance est très peu modifiée, et quand ce paramètre augmente par rapport à sa valeur en réseau cubique, l'amplitude de résonance diminue très rapidement (FIGURES III.37, III.38).
L'influence de b à partir de la FIGURE III.38 est plus difficile à déterminer, puisqu'on observe aussi les variations de c et a qui provoquent des changement notables dans la forme de μ_{eff}.

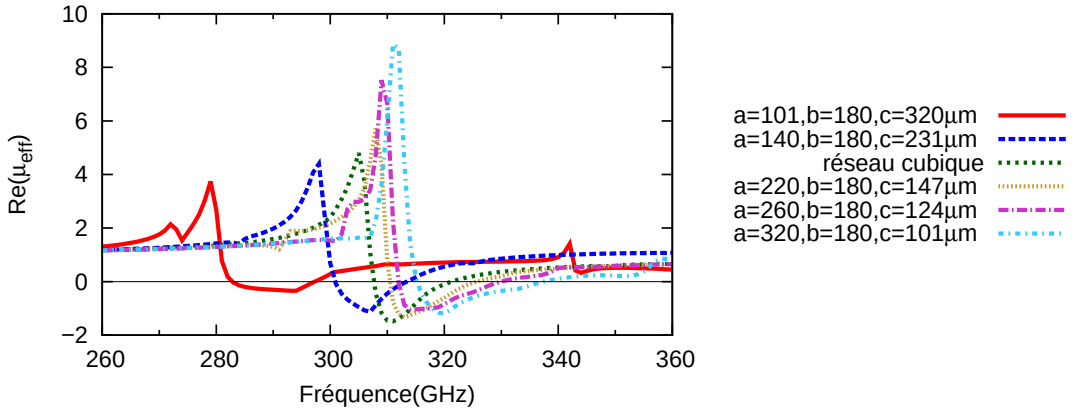

FIGURE III.38 – Comportement de la partie réelle de la perméabilité effective avec une fraction volumique de 9 % pour des réseaux orthorhombique en gardant b constant.

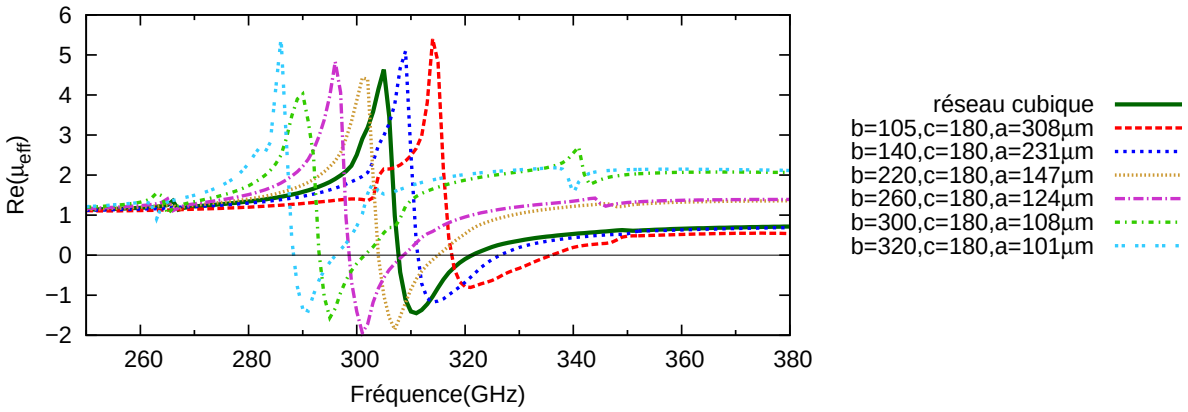

FIGURE III.39 – Comportement de la partie réelle de la perméabilité effective avec une fraction volumique de 9 % pour des réseaux orthorhombique en gardant c constant.

À la vue de ces courbes, on constate que la perméabilité effective, à cette fraction volumique, est sensiblement affectée seulement par des changements extrêmes dans l'aspect de la maille. Pour des variations relatives dans l'aspect de la maille inférieures à environ 70%, la perméabilité reste négative à des fréquences proches de celle prédite par les calculs de la théorie de Maxwell Garnett. Seules des variations relatives supérieures à 70%, correspondant à de très fortes inhomogénéités de maille, provoquent des changements importants dans la perméabilité (changement de fréquence de résonance , perte de la zone négative) conformément aux conclusions tirées dans [81].

III.3.2-b Réseau tétragonal

Pour confirmer cette tendance, nous nous intéressons au comportement de la partie réelle de la perméabilité lorsque l'on fait varier l'un des paramètres a, b, c, le réseau étant ainsi tétragonal. Un réseau tétragonal est un réseau orthogonal dont deux paramètres de mailles sont égaux, par exemple : $a = b \neq c$. Afin de connaître les limites pour obtenir une perméabilité négative, nous changeons le paramètre en question jusqu'à ce que la perméabilité effective ne soit plus négative ou que les sphères soient en quasi-contact. Nous conservons une fraction volumique constante, et ainsi, à mesure qu'un des paramètres

augmente, les deux autres diminuent de pair.

effet de a Nous avons simulé différents réseaux de paramètre a variable. Bien sûr, pour obtenir une fraction volumique constante, les paramètres b et c doivent aussi varier , suivant l'équation :

$$b = c = \sqrt{\frac{4}{3}\frac{\pi \cdot r^3}{a \cdot f}} \tag{III.24}$$

La direction de a est celle de la polarisation du champ magnétique incident. On a la confirmation, sur la

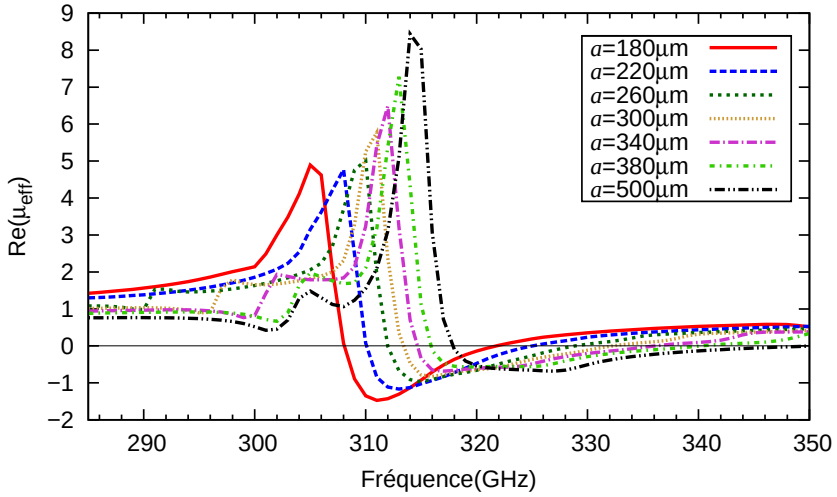

FIGURE III.40 – Influence de la longueur a dans le comportement de la perméabilité effective pour des particules de TiO_2 de 50 µm de rayon concentré à une fraction volumique de 9%.

FIGURE III.40, que quand on éloigne les sphères suivant la direction parallèle au champ magnétique, la fréquence de résonance est déplacée vers les hautes fréquences. On remarque aussi que l'amplitude de la zone négative est moins élevée mais sur une plus large plage de fréquences. Cependant, nous remarquons que même en poussant au maximum l'anisotropie du réseau (a très grand), on n'atteint pas de régime où la zone négative de le perméabilité disparaît.

effet de b Nous avons simulé différents réseaux de paramètre b variable. Là aussi, pour obtenir une fraction volumique constante, les paramètres a et c doivent varier, suivant l'équation :

$$a = c = \sqrt{\frac{4}{3}\frac{\pi \cdot r^3}{b \cdot f}} \tag{III.25}$$

Quand on éloigne les sphères suivant la direction parallèle au champ électrique, on observe clairement sur la FIGURE III.41 que la fréquence de résonance est déplacée vers les basses fréquences, ainsi que l'amplitude de la résonance diminue. Dans ce cas, on observe que la perméabilité n'atteint plus de valeurs négatives pour des valeurs de b extrême, correspondant à une variation relative de b de plus de 140% par rapport au cas cubique.

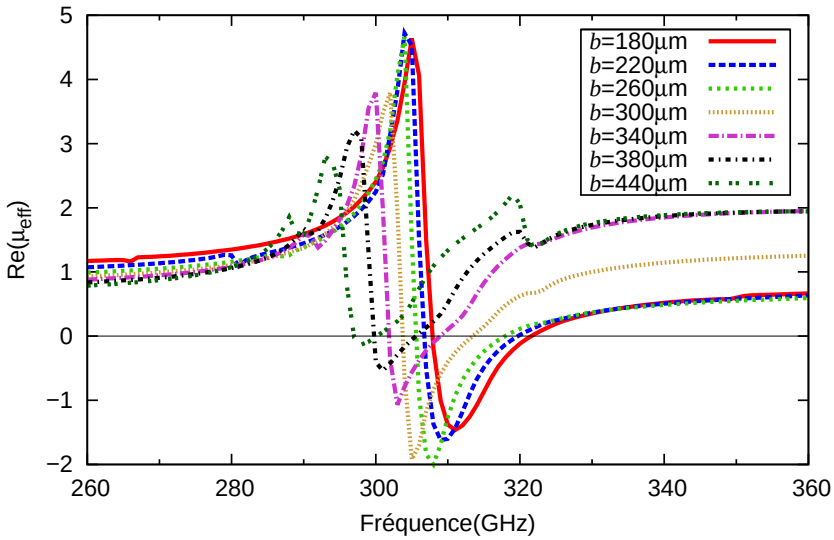

FIGURE III.41 – Influence de la longueur b dans le comportement de la perméabilité effective pour des particules de TiO_2 de 50 µm de rayon concentré à une fraction volumique de 9%.

effet de c Dans cette section nous montrons les résultats pour différents réseaux de paramètre c variable. Pour obtenir une fraction volumique constante, les paramètres a et b obéisent à l'équation :

$$a = b = \sqrt{\frac{4}{3}\frac{\pi \cdot r^3}{c \cdot f}} \tag{III.26}$$

Quand on éloigne les sphères suivant la direction parallèle à la direction de propagation de l'onde, on observe sur la FIGURE III.42 un décalage vers les basses fréquences de la zone négative ainsi qu'une diminution notable de l'amplitude de cette même zone. On remarque que la perméabilité cesse d'être

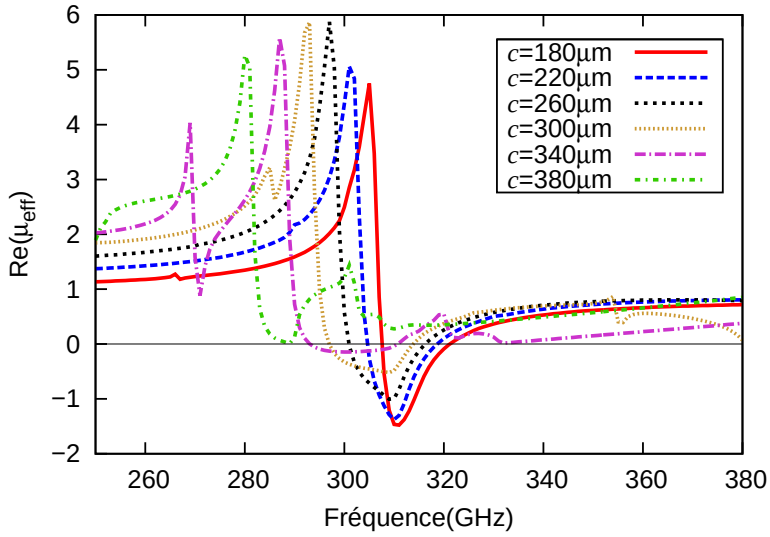

FIGURE III.42 – Influence de la longueur c dans le comportement de la perméabilité effective pour des particules de TiO_2 de 50 µm de rayon concentré à une fraction volumique de 9%.

négative pour des valeurs de c supérieure à 380 µm. Cependant, cette valeur correspond à un cas extrême où les sphères se répartissent en couche très dense ($a = b \approx 123$ µm) avec une distance de séparation des couches grandes.

Conclusions En conclusion de cette partie, nous voyons que seuls des changements drastiques de l'arrangement cristallin provoquent un changement radical dans le comportement de la perméabilité effective pour ces milieux composites et à cette fraction volumique. Ces résultats confirment les conclusions tirées dans [81], et on constate qu'il faut une répartition des sphères extrêmement inhomogènes dans le milieu composite pour empêcher l'émergence d'une perméabilité négative. Ces résultats donnent bon espoir pour la réalisation pratique d'un milieu auto-assemblé de sphères de TiO_2 présentant des effets magnétiques dans la gamme térahertz.

III.3.2-c Explication du sens de déplacement des résonances

Nous proposons ici une interprétation du décalage de la fréquence de résonance lorsque l'on change la forme du réseau cristallin. Cet explication est basée sur le calcul des fréquences de résonances entre paires de dipôles électriques dont les conclusions sont tirées dans [111]. Nous savons, d'après (II.33) et (II.33), que le champ électrique produit par un dipôle électrique à la même forme que le champ magnétique produit par un dipôle magnétique, et nous pouvons donc utiliser les résultats de [111] pour des dipôles magnétiques. De plus, en extrapolant ces résultats, non plus à des paires de dipôles, mais à des chaînes dont la distance entre maillons est variable, nous pouvons interpréter et expliquer les changements de fréquence de résonance de la section précédente.
Dans le réseau tridimensionnel de la FIGURE III.36, le couplage suivant les directions b et c du réseau correspondent au cas 1) de la FIGURE III.43 et le couplage suivant la direction a correspond au cas 2). D'après [111] dans le cas 1), lorsqu'on éloigne les sphères entre elles la fréquence de résonance

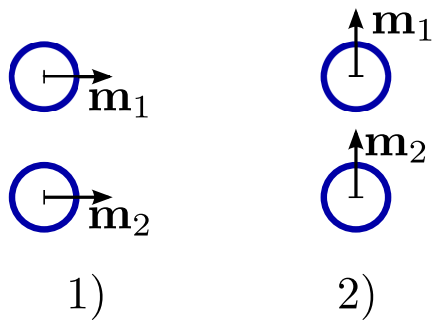

FIGURE III.43 – Les deux cas de figures possibles d'orientation de dipôles deux à deux dans le réseau tri-dimensionnel de la FIGURE III.36.

de l'ensemble est déplacée vers les basses fréquences et dans le cas 2), elle se déplace vers les hautes fréquences.
Ces résultats sont en accord avec nos conclusions de la section précédente puisque nous avions remarqué qu'un éloignement des sphères suivant a correspond à un décalage de la fréquence de résonance vers les hautes fréquences et qu'un éloignement suivant b ou c provoque un décalage des fréquences de résonance vers les basses fréquences. Cette interprétation permet aussi de comprendre le déplacement des fréquences de résonance dans les cas orthorhombique des FIGURES III.37, III.38, et III.39. Lorsque l'on diminue simultanément a et que l'on augmente c ou b, le déplacement vers les basses fréquences

est encore plus grand. Par contre, lorsque l'on laisse a constant comme sur la FIGURE III.37 les effets opposés de l'augmentation de c et de la diminution de b s'annulent.

III.3.3 Effet de la suppression de la correction radiative liée à la périodicité du réseau

Dans ce mémoire, les réseaux étudiés sont des réseaux périodiques et, ainsi que nous l'avons mentionné dans la section II.2.4-d, pour ce type de réseau, il faut théoriquement supprimer les pertes radiatives.
Afin de voir l'effet de cette modification dans les cas concret que nous étudions, nous considérons ici, comme dans la partie III.3.1, des sphères de TiO_2 de 50 µm de rayons à une fraction volumique de 9% et nous calculons les paramètres effectifs issus de la théorie de Maxwell Garnett étendue, basée sur la polarisabilité dynamique de Mie : nous comparons le résultat avec cette polarisabilité non modifiée (incluant les pertes radiatives) selon l'équation (II.60) avec le résultat où l'on retranche à la polarisabilité le terme de pertes radiatives (équation II.65). Ces résultats sont présentés sur la FIGURE III.44. Nous remarquons sur cette figure que lorsque l'on supprime les pertes radiatives, seule l'amplitude de résonance est affectée, ainsi que le niveau de pertes (légèrement) mais en aucun cas la position de la résonance.
Sur la FIGURE III.45, nous comparons les résultats issus de la théorie de Maxwell Garnett étendue sans pertes radiatives et ceux issus de l'extraction par la méthode de Scher et de NRW. Sur cette figure, on observe que les résultats de Maxwell Garnett privé de pertes radiatives s'accordent très bien avec l'extraction par la méthode de Scher, alors que ce n'était pas le cas pour MG non modifié (FIGURE III.34). Or, nous rappelons que dans le calcul par la méthode de Scher, les pertes radiatives au sein du réseau périodique sont également supprimées ; l'accord que nous observons semble ainsi naturel.

Si l'on compare maintenant la FIGURE III.45 et la FIGURE III.34, on constate que la méthode NRW concorde, quant à elle, clairement mieux avec les résultats de la théorie de Maxwell Garnett étendue où les pertes radiatives sont conservées malgré la présence du réseau. Une interprétation provisoire que nous pouvons proposer pour expliquer cette entorse au point de vue purement théorique est que, dans la structure simulée, un grand nombre de mécanismes de pertes se conjuguent (par exemple multipolaires), et se trouvent bien pris en compte dans le processus d'extraction de NRW. En revanche, les différentes approximations inhérentes à la théorie de Maxwell Garnett ne permettent de prendre en compte que les pertes dipolaires des particules. Ainsi, en omettant de supprimer les pertes radiatives dans le réseau périodique, on « rattrape » en quelque sorte cette faiblesse de MG de manière *ad hoc*. Nous avons donc choisi, empiriquement, de ne pas tenir compte de la suppression des pertes radiatives au sein d'un réseau périodique dans la suite de ce mémoire.

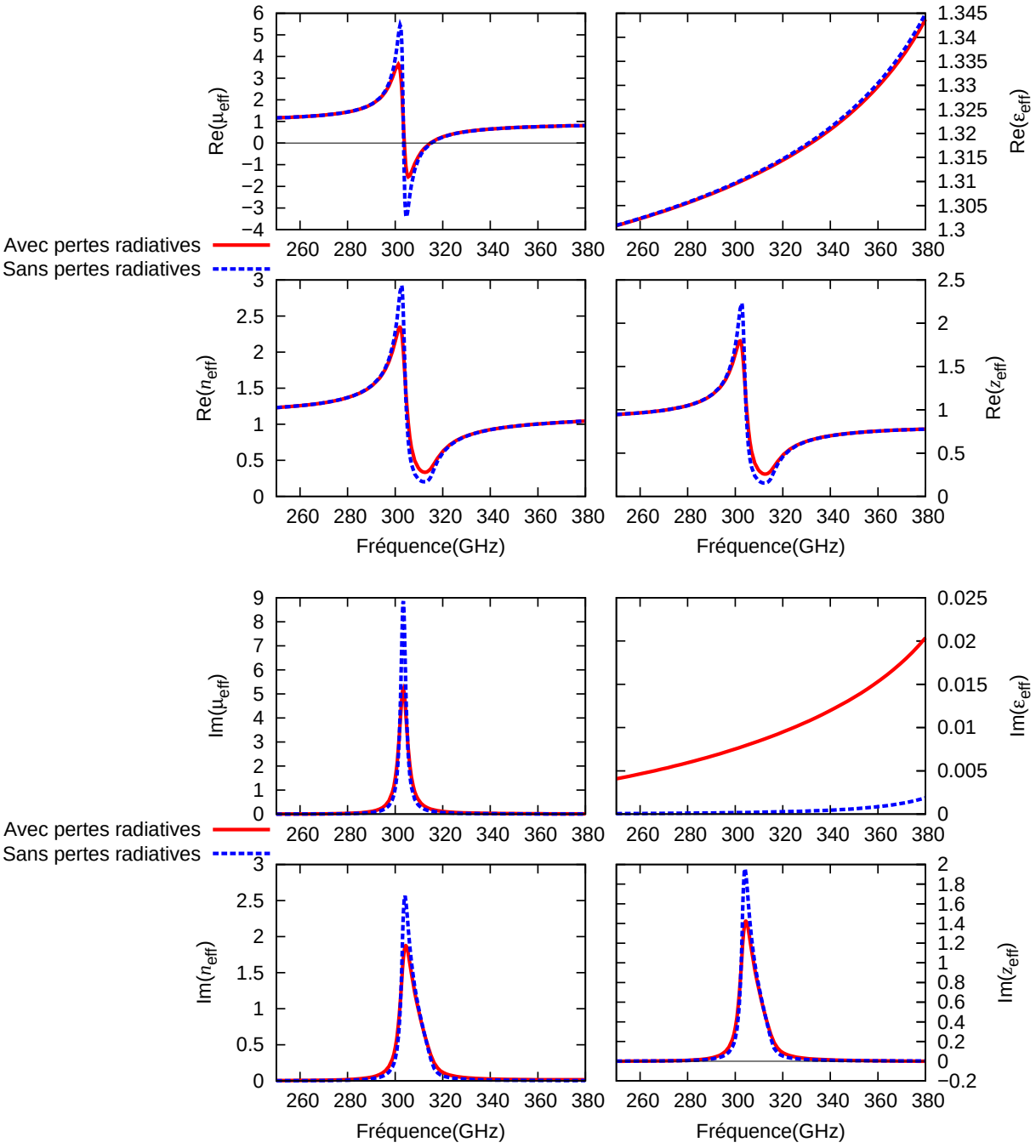

FIGURE III.44 – Comparaison des résultats de la théorie de Maxwell Garnett étendue, en incluant ou non les pertes radiatives.

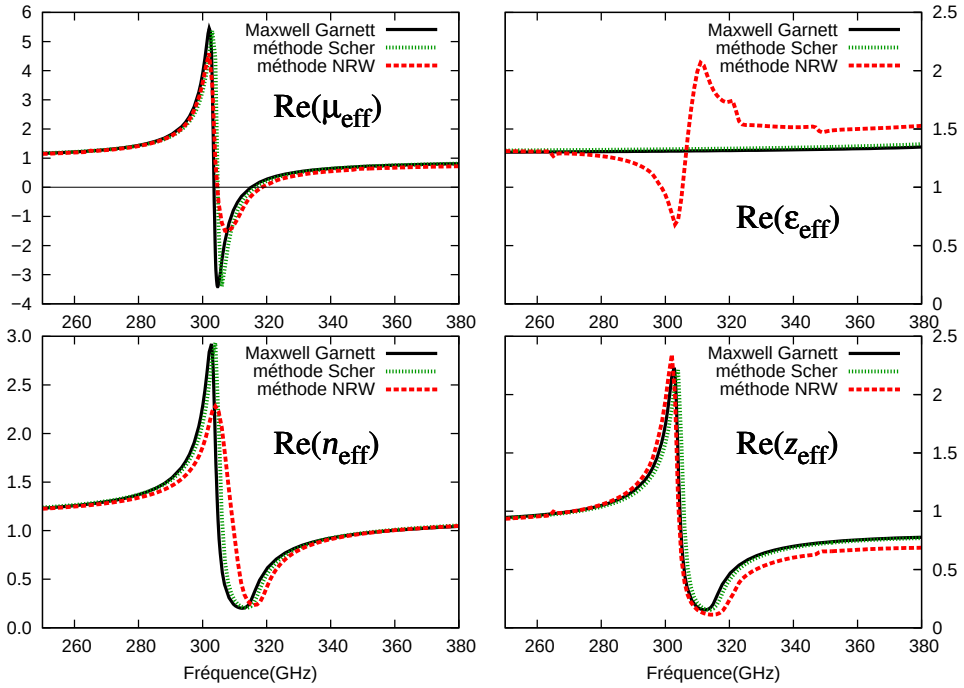

FIGURE III.45 – Modification des résultats présentés sur la FIGURE III.34 en supprimant les pertes radiatives au sein du réseau dans la théorie de Maxwell Garnett étendue.

III.4 Analyse modale dans l'approximation du dipôle unique

Nous présentons ici l'analyse modale des structures de sphères que nous avons étudiées, menée par Salvatore Campione (doctorant) et le Pr. Filippo Capolino de l'Université de Californie - Irvine dans le cadre de l'approximation du dipôle unique (*Single dipole approximation* ou SDA).
Le principe fondamental de cette méthode réside dans le fait que les particules constituant le matériau sont assimilées à des dipôles uniques (dans le cas ci-présent des dipôles magnétiques) et que toutes les interactions entre ces dipôles sont prises en compte dans le calcul. Cette méthode d'analyse est expliquée en détail dans la référence [77]. Pour que cette approximation soit valide, il est donc crucial que les particules soient petites devant la longueur d'onde mais aussi que les distances entre particules soient suffisamment grande, c'est-à-dire typiquement que le rayon des particules soit inférieur environ au tiers du pas du réseau. Dans le cas contraire, les interactions multipolaires deviennent importantes et l'approximation dipolaire n'est plus justifiée.
Dans la suite, nous rappelons les bases physiques de la SDA, puis nous montrons la comparaison avec les résultats que nous avons obtenus par le calcul de la théorie de Maxwell Garnett et les simulations par éléments finis .

III.4.1 Modélisation par la SDA et structures étudiées

Nous considérons un réseau tridimensionnel de particules sphériques de TiO_2 de rayons r dont la cellule unitaire est représentée sur la FIGURE III.46. Chaque sphère du réseau est modélisée par un dipôle magnétique donnant naissance au moment dipolaire :

$$\mathbf{m}_0 = \beta_p \mathbf{H}^{loc} \tag{III.27}$$

où β_p est la polarisabilité magnétique des particules, et $\mathbf{H}^{loc}$ le champ local, superposition du champ

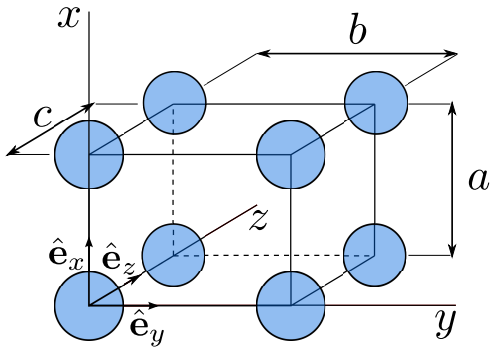

FIGURE III.46 – Représentation schématique de l'arrangement tridimensionnel de sphères de TiO_2 immergées dans un milieu hôte de permittivité ε_h étudié en SDA. Les sphères sont de rayon r et le pas du réseau suivant x, y, z est respectivement noté a, b, c.

incident et du champ produit par toutes les autres microparticules de l'arrangement sur la sphère considérée.
On utilise l'expression dynamique (II.57), issue de la théorie de Mie, pour la polarisabilité :

$$\beta_p = 6\pi i b_1 \frac{1}{k_h^3} \tag{III.28}$$

où k_h est le vecteur d'onde de l'onde excitatrice dans le milieu hôte. On considère maintenant que les sphères sont immergées dans un milieu hôte homogène de permittivité relative ε_h, et sont placées aux positions :

$$\mathbf{r}_n = \mathbf{r}_0 + \mathbf{d}_n, \qquad \mathbf{d}_n = n_1 a\mathbf{s}_1 + n_2 b\mathbf{s}_2 + n_3 c\mathbf{s}_3 \tag{III.29}$$

avec $\mathbf{s}_1, \mathbf{s}_2, \mathbf{s}_3$ les vecteurs de base du réseau cristallin, $n_1, n_2, n_3 = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$, $\mathbf{r}_0 = x_0\hat{\mathbf{e}}_x + y_0\hat{\mathbf{e}}_y + z_0\hat{\mathbf{e}}_z$ la position de la première sphère et a, b et c les périodicités suivant x, y et z respectivement.

On suppose que ce réseau est excité par une onde plane de vecteur d'onde :

$$\mathbf{k}_\mathrm{B} = k_x\hat{\mathbf{e}}_x + k_y\hat{\mathbf{e}}_y + k_z\hat{\mathbf{e}}_z \tag{III.30}$$

ce qui donne naissance dans chaque microsphère à un moment magnétique égal à

$$\mathbf{m}_n = \mathbf{m}_0 \mathrm{e}^{i\mathbf{k}_\mathrm{B}\cdot\mathbf{d}_n} \tag{III.31}$$

qui est relié au moment magnétique en $\mathbf{r}_0$ par un simple effet de déphasage. Le champ magnétique local agissant sur une microsphère à la position $\mathbf{r}_0$ est donné par :

$$\mathbf{H}^\mathrm{loc}(\mathbf{r}_0, \mathbf{k}_\mathrm{B}) = \mathbf{H}^\mathrm{inc}(\mathbf{r}_0) + \breve{\underline{\mathbf{G}}}^\infty(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \mathbf{k}_\mathrm{B}) \cdot \mathbf{m}_0 \tag{III.32}$$

où $\mathbf{H}^\mathrm{inc}$ est le champ magnétique de l'onde excitatrice. $\breve{\underline{\mathbf{G}}}^\infty(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \mathbf{k}_\mathrm{B})$ est une fonction de Green régularisée (sans discontinuités en $\mathbf{r} = \mathbf{r}_0$), définie comme $\breve{\underline{\mathbf{G}}}^\infty(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \mathbf{k}_\mathrm{B}) = \underline{\mathbf{G}}^\infty(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \mathbf{k}_\mathrm{B}) - \underline{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0)$. Cette fonction de Green régularisée fait intervenir la fonction de Green dyadique du champ magnétique créé au point $\mathbf{r}$ par l'ensemble du réseau périodique de microsphères pour un dipôle-source placé en $\mathbf{r}_0$:

$$\underline{\mathbf{G}}^\infty(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \mathbf{k}_\mathrm{B}) = \sum_n \underline{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0 + \mathbf{d}_n) \mathrm{e}^{i\mathbf{k}_\mathrm{B}\cdot\mathbf{d}_n}, \tag{III.33}$$

ainsi que la fonction de Green dyadique d'un dipôle unique placé dans le milieu hôte (champ produit en $\mathbf{r}_m$ par un dipôle magnétique unité en $\mathbf{r}_n$) : $\underline{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_m, \mathbf{r}_n)$. En supposant le milieu-hôte homogène, la fonction de Green du dipôle unique est simplement :

$$\underline{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_m, \mathbf{r}_n) = \frac{\mathrm{e}^{ik_\mathrm{h} r_{mn}}}{4\pi} \left[\left(\frac{k_\mathrm{h}^2}{r_{mn}} + \frac{ik_\mathrm{h}}{r_{mn}^2} - \frac{1}{r_{mn}^3} \right) \underline{\mathbf{I}} - \left(\frac{k_\mathrm{h}^2}{r_{mn}} + \frac{3ik_\mathrm{h}}{r_{mn}^2} - \frac{3}{r_{mn}^3} \right) \hat{\mathbf{r}}_{mn}\hat{\mathbf{r}}_{mn} \right], \tag{III.34}$$

où $r_{mn} = |\mathbf{r}_m - \mathbf{r}_n|$ et $\hat{\mathbf{r}}_{mn}$ est le vecteur allant de la source en $\mathbf{r}_n$ vers l'observateur en $\mathbf{r}_m$. En substituant alors l'expression pour le champ local (III.32) dans (III.27), on obtient :

$$\mathbf{m}_0 = \beta_\mathrm{p} \left[\mathbf{H}^\mathrm{inc}(\mathbf{r}_0) + \breve{\underline{\mathbf{G}}}^\infty(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \mathbf{k}_\mathrm{B}) \cdot \mathbf{m}_0 \right], \tag{III.35}$$

Ce qui mène au système linéaire

$$\underline{\mathbf{A}}(\mathbf{k}_\mathrm{B}) \cdot \mathbf{m}_0 = \beta_\mathrm{p} \mathbf{H}^\mathrm{inc}(\mathbf{r}_0) \tag{III.36}$$

avec $\underline{\mathbf{A}}$ défini comme :

$$\underline{\mathbf{A}}(\mathbf{k}_\mathrm{B}) = \underline{\mathbf{I}} - \beta_\mathrm{p} \breve{\underline{\mathbf{G}}}^\infty(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \mathbf{k}_\mathrm{B}). \tag{III.37}$$

où $\underline{\mathbf{I}}$ est le tenseur-unité. Les modes propres complexes pouvant se propager dans la structure sont ensuite calculés à partir de ce système d'équations en l'absence de source externe ($\mathbf{H}^\mathrm{inc} = \mathbf{0}$).

III.4.2 Résultats de la SDA et comparaison avec la théorie de Maxwell Garnett

Nous montrons ici les modes propres complexes, calculés à partir du système d'équations (III.36) (III.37), se propageant selon la direction z avec un vecteur d'onde :

$$k_z = k'_z + ik''_z \tag{III.38}$$

avec des polarisations transverses (selon la direction x ou y). Nous précisons qu'il existe également des modes longitudinaux se propageant dans la structure, cependant nous avons choisi de ne pas les représenter car ce sont essentiellement des modes statiques sur l'ensemble de la gamme de fréquence d'intérêt ($k'_z \approx 0$ pour ces modes longitudinaux).
Trois arrangements cubiques (i.e. $a = b = c$ et $\mathbf{s}_1 = \hat{\mathbf{e}}_x, \mathbf{s}_2 = \hat{\mathbf{e}}_y, \mathbf{s}_3 = \hat{\mathbf{e}}_z$), que nous numéroterons I, II, et III, ont été étudiés, pour différentes fractions volumiques $f = \dfrac{4\pi r^3}{3a^3}$ (voir tableau des structures TABLEAU III.3. Le milieu hôte est le vide, de paramètres $\{\varepsilon_0, \mu_0\}$, et la permittivité des sphères est celle de TiO_2

Structure	r (µm)	a (µm)	f (%)
I	52	146,4	18,76
II	52	126,0	29,44
III	52	106,0	49,45

TABLEAU III.3 – Les trois structures analysées en SDA

qui a été prise constante pour l'intervalle de fréquence considéré ($\varepsilon_p = 94 + 2,35i$). Nous avons vérifié, en comparant les amplitudes des coefficients de Mie, que les effets électriques sont négligeables devant les effets magnétiques (pour les fréquences considérées), justifiant ainsi la modélisation des sphères par un dipôle magnétique uniquement.
Les résultats de l'analyse des modes propres issus de la SDA pour les structures I, II et III sont représentés en trait pleins sur la FIGURE III.51. Seuls les modes satisfaisant la condition de passivité (i.e. $k''_z > 0$) ont été conservés.

Nous n'avons représenté sur cette figure que les deux modes dominants (c'est-à-dire les deux modes ayant les pertes les plus faibles, soit k''_z les plus petits) se propageant dans chacune des structures. On voit que les modes 1 sont des modes progressifs (*forward mode*) et les modes 2 des modes rétrogrades (*backward mode*). On observe également que les pertes du mode 2 sont toujours nettement supérieures à celle du mode 1, si bien que l'on peut considérer que seul le monde 1 est observé en pratique.

Dans ce fait, il est possible de calculer l'indice de la structure correspondant à ce mode principal par :

$$k_z^{\mathrm{SDA}} = k_0 \cdot n^{\mathrm{SDA}} \tag{III.39}$$

Cet indice n^{SDA} dépend seulement du caractère magnétique de dipôles placés dans le vide, et ainsi il est directement relié à la perméabilité effective par la relation $n^{\mathrm{SDA}} = \sqrt{\mu_{\mathrm{eff}}}$, puisque dans le calcul de SDA le milieu hôte est le vide ($\varepsilon_h = 1$). On peut ainsi calculer la valeur de la perméabilité effective selon la méthode SDA :

$$\mu_{\mathrm{eff}} = (n^{\mathrm{SDA}})^2 = \left(\frac{k_z^{\mathrm{SDA}}}{k_0}\right)^2 \tag{III.40}$$

Nous donnons sur la FIGURE III.48, les perméabilités effectives obtenues par la SDA, par la théorie de Maxwell Garnett étendue, et extraites des éléments finis par la méthode NRW. Pour tous les types de

courbe, on peut dire qu'elles ont toutes des formes typiques de résonance, et comme nous l'avons dans les sections précédentes, on peut également y observer que la zone de perméabilité négative s'élargit et gagne en amplitude lorsque la fraction volumique croît.

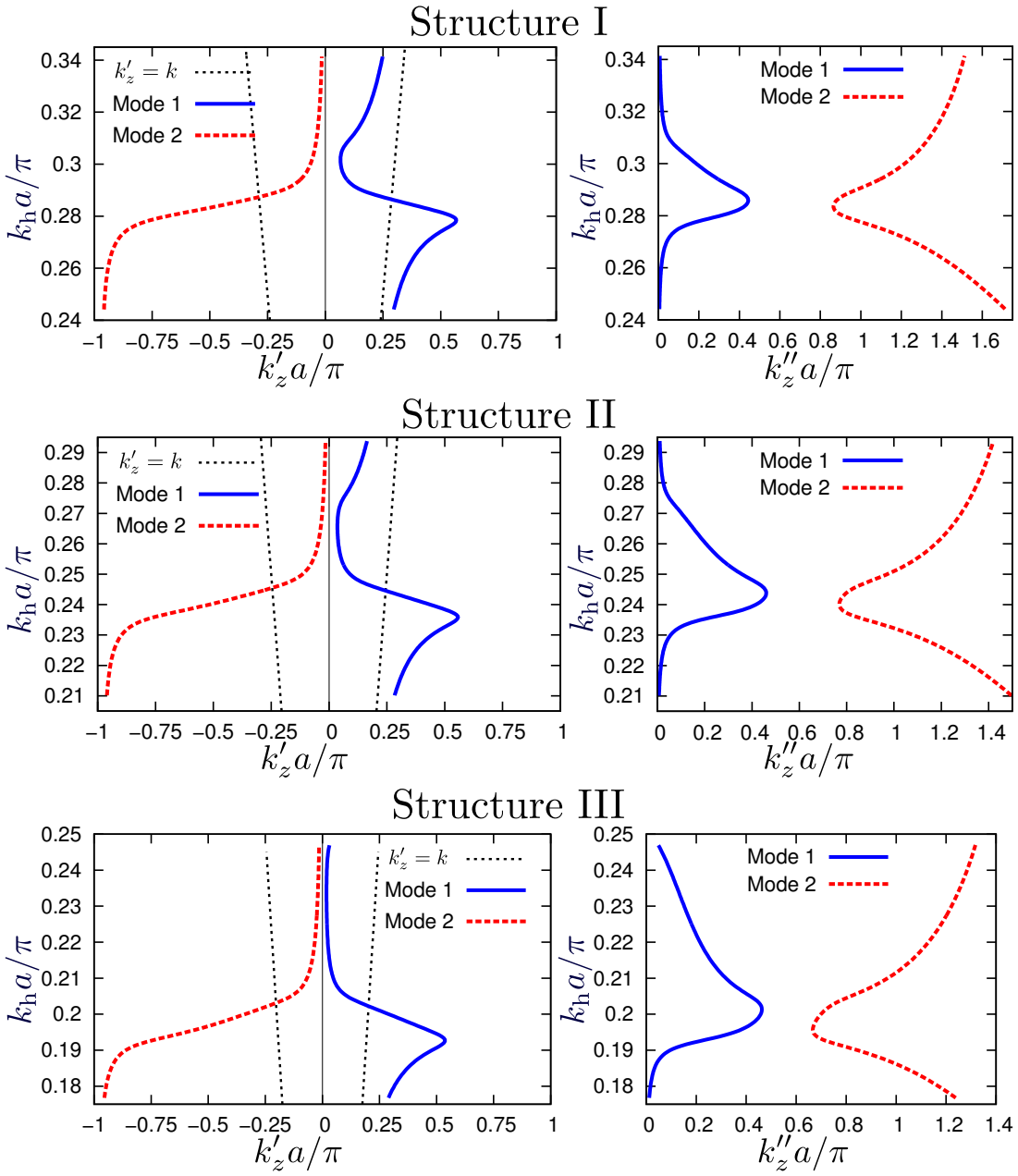

FIGURE III.47 – Vecteurs d'onde des deux premiers modes transverses issus du calcul SDA. À gauche, partie réelle du vecteur d'onde des modes k'_z en unités adimensionnées. À droite, partie imaginaire du vecteur d'onde des modes k''_z en unités adimensionnées. Les ordonnées font apparaître les valeurs du vecteur d'onde renormalisé de l'onde incidente, c'est-à-dire que l'abscisse est proportionnelle à la fréquence.

En comparant ces courbes, on remarque que l'accord entre les trois méthodes est très bon pour la

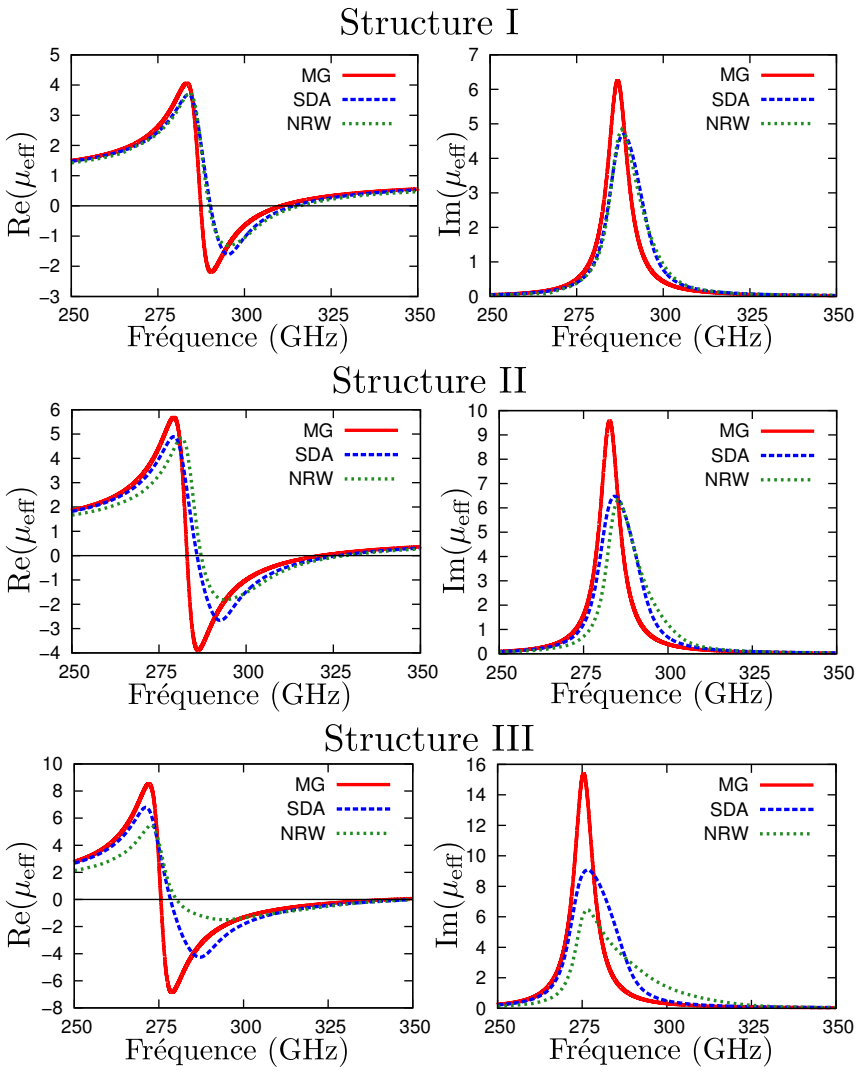

FIGURE III.48 – Comparaison de la partie réelle et imaginaire de la perméabilité effective obtenue par la SDA, par la théorie de Maxwell Garnett étendue et par l'extraction des paramètres effectifs par la méthode NRW des simulations par éléments finis.

structure I et se détériore au fur et à mesure que la fraction volumique augmente. Pour la structure III, qui correspond à un cas très concentré, on se rend compte que le résultat issu de l'extraction NRW est assez largement différent des résultats donnés par les deux autres méthodes. Ce dernier comportement peut sans doute s'expliquer par le fait que pour de telles distances entre sphères, les modes multipolaires d'ordres supérieurs (qui ne sont pris en compte ni dans la SDA ni dans la théorie de Maxwell Garnett) deviennent dominant, et, les négliger conduit donc à des écarts importants.

Il est à noter que dans la formule de Maxwell Garnett étendue, nos collaborateurs ont choisi d'utiliser une version dans laquelle a été supprimée la correction radiative en raison de la périodicité du réseau (II.65). Nous notons cependant, que comme nous l'avons nous-même observé à la section III.3.3, les courbes SDA seraient sans doute plus proches des valeurs obtenues par NRW, en gardant la correction radiative dans le calcul, en particulier pour la structure III. Nous souhaitons ensuite comparer les résultats obtenus par les différentes méthodes pour l'indice effectif du milieu. Il faut dans ce cas faire attention au fait

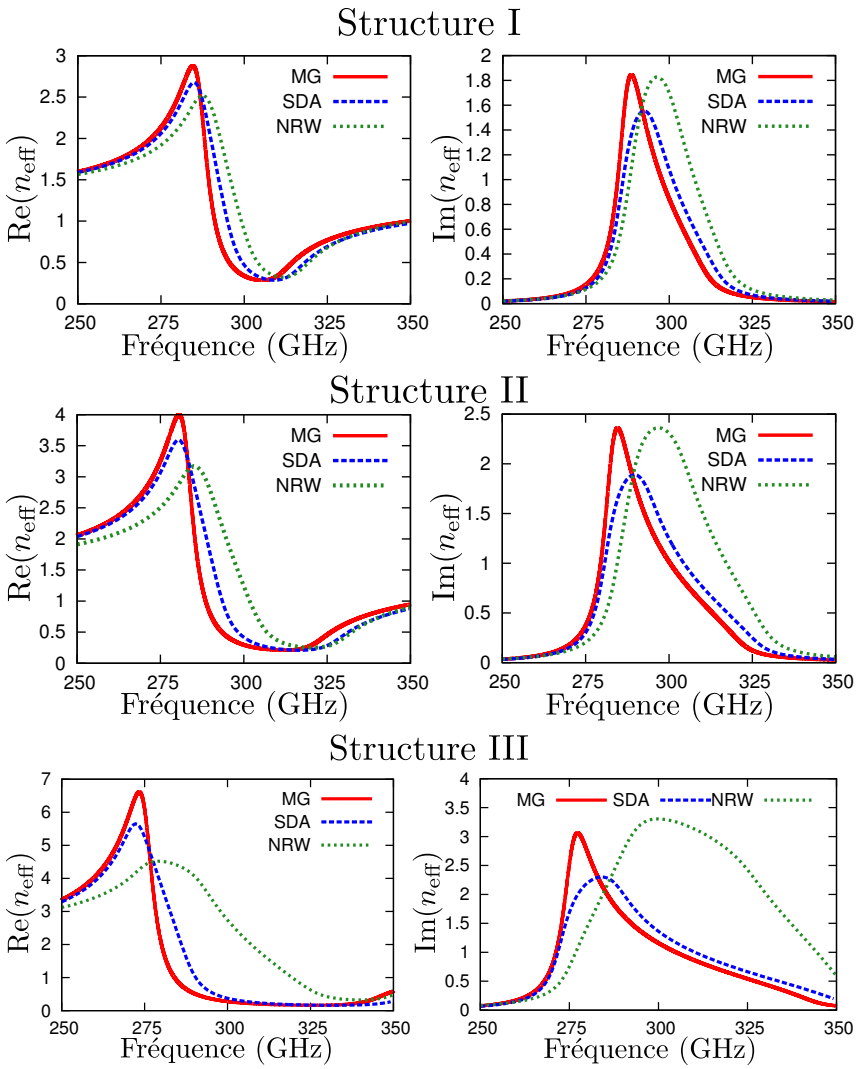

FIGURE III.49 – Comparaison de la partie réelle et imaginaire de la perméabilité effective obtenue par la SDA, par la théorie de Maxwell Garnett étendue et par l'extraction des paramètres effectifs par la méthode NRW.

que dans les résultats de la SDA négligent par construction tout effet diélectrique des particules de la structure. Il est donc nécessaire de corriger manuellement la valeur de l'indice n^{SDA} en tenant compte de la présence d'un milieu hôte de permittivité effective $\varepsilon_{\mathrm{eff}}$. On pourrait être tenté d'introduire cette permittivité effective environnante dès le début du calcul de SDA ; néanmoins, S. Campione et F. Capolino ont pu montrer que les résultats ne sont pas très bons pour ajuster les valeurs d'indice trouvées dans les autres méthodes. Ceci n'est pas forcément surprenant car il faut garder à l'esprit que cette permittivité est *effective* et non réelle pour le milieu hôte, ainsi il n'est pas clair que les dipôles magnétiques perçoivent véritablement le milieu effectif lorsqu'ils rayonnent. Une autre approche, que nous adoptons ici, est de corriger *a posteriori* l'indice obtenu par SDA de la manière suivante :

$$\mathrm{Re}(n_{\mathrm{eff}}) = \mathrm{Re}(n^{\mathrm{SDA}}) \cdot \sqrt{\mathrm{Re}(\varepsilon_{\mathrm{eff}})} \tag{III.41}$$

pour la partie réelle. D'autre part, la partie imaginaire de $\varepsilon_{\mathrm{eff}}$ étant très faible, la correction sur les parties

imaginaires peut être négligée. Nous avons représenté l'indice SDA corrigé, celui issu de la théorie de Maxwell Garnett et enfin, celui extrait des éléments finis par la méthode NRW sur la FIGURE III.49.

Là aussi, on observe un élargissement de la zone de résonance lorsque la fraction volumique augmente, ainsi qu'une augmentation des pertes. La comparaison de ces courbes amènent aux mêmes conclusions que pour la perméabilité, avec un accord entre les différents résultats se dégradant lorsque la fraction volumique croît.
Malgré les différences émergeant à fraction volumique élevée, ces résultats confirment bien que la description du milieu par MG réalisée dans ce chapitre pour des fractions volumiques inférieures à 20 % reste bonne.

III.4.3 Comparaison des résultats entre la SDA et les résultats des éléments finis

Dans cette section, nous comparons les modes dans la structure calculés à partir de la SDA avec ceux qu'on peut trouver dans les simulations par éléments finis HFSS. Le calcul des modes à partir des éléments finis a été fait par ajustement du champ magnétique le long d'une droite passant par le centre des sphères comme représenté sur la FIGURE III.50. Les paramètres de la simulation sont ceux précisés

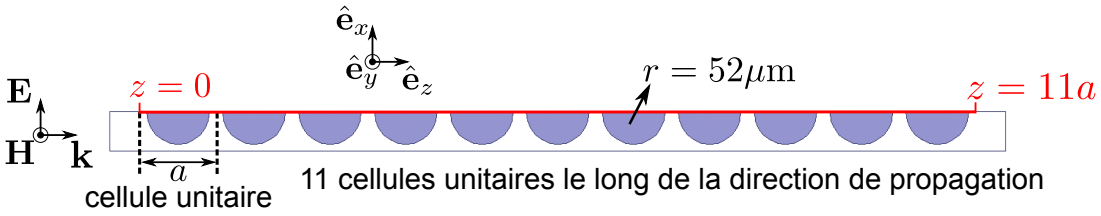

FIGURE III.50 – Droite passant par le centre des sphères, sur laquelle est relevée le champ magnétique à ajuster par l'équation (III.42).

par le TABLEAU III.3 et la structure comporte 11 couches de sphères (au lieu de 5) pour pouvoir utiliser un maximum de points pour l'ajustement. Le champ magnétique incident est dirigé suivant $\hat{\mathbf{e}}_y$ et c'est cette composante que nous ajustons, en supposant qu'il existe deux modes à l'intérieur de la structure ; l'équation à ajuster au champ extrait est alors :

$$H_y(z) = A\mathrm{e}^{ik_{z,1}\cdot z} + B\mathrm{e}^{ik_{z,2}\cdot z} \tag{III.42}$$

avec $k_{z,1}$ et $k_{z,2}$ les vecteurs d'ondes du mode 1 et 2 respectivement.
Nous signalons que ces ajustements, menés à bien par nos collaborateurs de Californie, sont très délicats à mener en raison du caractère non-linéaire de cette équation, la solution finale dépendant très fortement du choix des paramètres initiaux.
Les résultats de ces ajustements sont montrés sur la FIGURE III.51 en traits pointillés. Pour la structure I, on observe un très bon accord entre les modes calculés par SDA et ceux ajustés à partir du champ de HFSS. Cet accord se détériore lorsque l'on augmente la fraction volumique pour les structures II et III.

De même que pour les indices et les perméabilités, ce comportement s'explique en examinant les distances entre particules. Pour la structure I, $a \approx 3r$ et, comme nous l' avons dit en introduction, il s'agit de la valeur limite pour considérer que les sphères se comportent comme des dipôles. Dans ce cas, la SDA décrit correctement le comportement de la structure I. En ce qui concerne les structures II et III, les distances entre particules sont inférieures à cette valeur limite, et l'influence des multipôles d'ordre supérieur devient non négligeable, mettant en défaut les prédictions de la SDA.

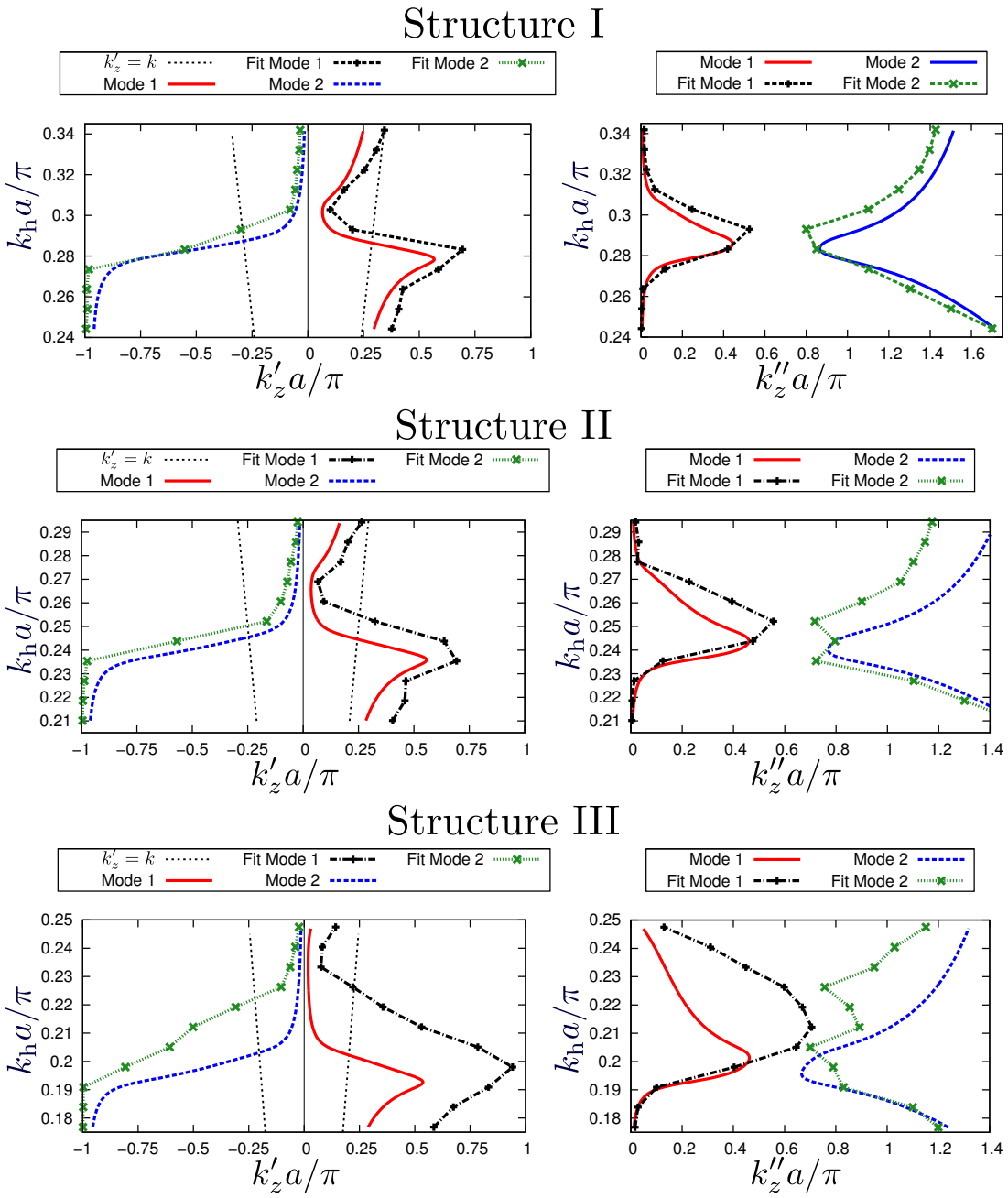

FIGURE III.51 – Modes transverse se propageant dans les différentes structures définies dans le TABLEAU III.3.

III.4.4 Conclusions sur la SDA

Cette section a été consacré aux résultats issus de la collaboration avec l'équipe de Filippo Capolino sur l'approximation du dipôle unique (SDA) permettant de calculer les modes complexes se propageant dans les structures périodiques. Après avoir rappelé les principes de bases de cette méthode, nous avons montré les différents modes se propageant dans des structures cubiques de sphères de TiO_2. A partir de ces modes, nous avons extrait la perméabilité effective ainsi que l'indice effectif que nous avons comparé aux résultats de la théorie de de Maxwell Garnett et à ceux des éléments finis extraits part la méthode

NRW. Ces résultats ont montré un bon accord pour une fraction volumique de 18,76% qui se dégrade avec l'augmentation de la fraction volumique, confirmant ainsi les résultats des sections précédentes. À forte fraction volumique, la comparaison des indices ainsi que celle des modes issus de la SDA et extrait par la méthode NRW, ont mis en évidence des écarts importants. Une interprétation possible de ces différences est l'importance des modes multipolaires d'ordre supérieurs pour les échantillons concentrés.

III.5 Conclusions

Dans ce chapitre nous avons étudié les propriétés électromagnétiques (et en particulier magnétiques), dans la gamme térahertz, d'un métamatériau formé d'un ensemble ordonné de sphères diélectriques. Nous avons tout d'abord examiné les principaux matériaux susceptibles de posséder une permittivité élevée et de faibles pertes dans la gamme térahertz et avons retenu trois candidats : TiO_2, $LiTaO_3$, et $MgTiO_3$. Nous avons, en utilisant la théorie de Maxwell Garnett, montré que les résonances de Mie de sphères de tels matériaux donnent naissance à une forte réponse magnétique, avec notamment une zone de perméabilité élevée et une zone de perméabilité négative. Nous avons aussi précisé les conditions (taille des sphères, fractions volumiques) nécessaires à l'émergence d'une perméabilité négative avec ces matériaux.
Ces résultats, en nous restreignant au meilleur candidat TiO_2, ont été confronté aux simulations par éléments finis. Après avoir vérifié que le nombre de sphères utilisées dans la simulation n'avait que peu d'importance, nous avons comparé le résultat issu des deux méthodes d'extraction du chapitre précédent. Ces différents résultats concordent bien en ce qui concerne la perméabilité et nous avons ensuite considéré seulement l'extraction de NRW. Nous avons ensuite montré que pour un réseau cubique à faible fraction volumique (inférieure à 20%) l'accord entre les résultats de la théorie de Maxwell Garnett et ceux des éléments finis est bon. Nous avons considéré l'influence de l'arrangement cristallin en considérant des réseaux tétragonaux et orthorhombiques, qui mettent en évidence un bon accord avec la théorie de Maxwell Garnett lorsque les variations relatives dans l'aspect de mailles sont inférieures à 70%. Au delà de ces valeurs, des écarts importants sont observés entre la théorie de Maxwell Garnett et les simulations, et confirment ainsi les résultats de Mallet et al. [81]. La dernière confrontation de ces résultats a été faite en comparant la théorie de Maxwell Garnett avec une analyse modale des structures dans l'approximation du dipôle unique (SDA). Dans cette méthode, chaque sphère est modélisée par un dipôle magnétique et toutes les interactions entre dipôles sont prises en compte. La comparaison des modes complexes, des perméabilités ainsi que des indices effectifs pour un réseau cubique de sphères de TiO_2 pour différentes fractions volumiques a mis en évidence un bon accord pour la fraction volumique la plus faible (18,76%), confirmant ainsi les résultats de ce chapitre. Pour les fractions volumiques les plus élevées, un large désaccord a été observé avec le résultat des éléments finis, mettant ainsi en évidence l'importance des modes multipolaires d'ordre supérieurs dans ces structures fortement concentrées.

Dans le chapitre qui vient, nous étudierons un autre paramètre pouvant influencer la perméabilité effective de milieux composites de sphères diélectriques : l'effet de la dispersion en taille des résonateurs dans la réponse magnétique du milieu.

Chapitre IV

Effet de la distribution en taille des particules

Mon travail de thèse s'inscrit dans des projets au long cours autour de systèmes auto-assemblés constitués de particules synthétisées chimiquement et dispersées dans un milieu hôte permettant leur mise en forme. La plupart des procédés chimiques intervenant dans la fabrication des particules (processus sol-gel, synthèse en milieu aqueux), ne permettent pas un contrôle parfait de la taille et de la forme de ces particules. Ainsi, en attendant l'évolution des techniques de synthèses, les métamatériaux auto-assemblé fabriqués ressembleront vraisemblablement à celui représenté sur la FIGURE IV.1. Une mesure expéri-

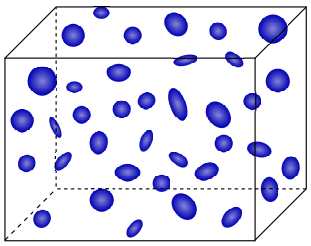

FIGURE IV.1 – Milieu auto-assemblés constitués de particules synthétisée chimiquement.

mentale pour déterminer les paramètres effectifs d'un tel matériau composite devrait montrer des écarts avec les résultats « idéaux » montrés au chapitre précédent.
Comme premier pas pour la modélisation de tels matériaux composites, nous nous intéresserons, dans ce chapitre, à l'effet d'une distribution en taille des résonateurs sphériques sur la réponse magnétique effective. Cet effet est inhérent à une réaction chimique de synthèse et porte le nom, en chimie, de polydispersité en taille. L'objectif de ce paragraphe est d'établir si cet effet est forcément néfaste (suppression de la zone de perméabilité négative) ou bien si, en quantité maîtrisée, il peut être intéressant.
Cette étude sur l'influence de la taille des résonateurs dans la réponse magnétique, peut être mis en parallèle avec les résultats sur les SRRs des références [112, 113, 114, 115], qui ont montré une grande sensibilité de la résonance magnétique dans les paramètres de taille des SRRs.
Nous rappelons la condition de résonance magnétique (III.8) pour des sphères d'indice n_p :

$$\frac{\lambda_0}{\mathrm{Re}(n_p)} \approx d \tag{IV.1}$$

qui montre que la fréquence de résonance dépend du diamètre des sphères d. Ainsi, pour un milieu composé de sphères de tailles différentes, chacune d'entre elles résonnera à une fréquence particulière. On peut présumer que si les écarts en taille sont très importants, le recouvrement fréquentiel des résonances de chaque particule n'aura pas lieu et le milieu composite ne présentera plus, collectivement, de zone de perméabilité effective négative. Afin de vérifier cette hypothèse et de déterminer la distribution en taille maximale admissible pour conserver une zone de perméabilité négative, nous étudions dans ce chapitre cet effet de manière analytique.

IV.1 Théorie de Maxwell Garnett pour plusieurs tailles de particules (distribution polydisperse)

Nous établissons ici la formulation de Maxwell Garnett en considérant une distribution en taille de particules sphériques. Nous nous inspirons ici, de la démarche suivie dans [46], où la manière de calculer les paramètres effectifs est clairement explicitée. Il s'agit d'appliquer la formule étendue de Maxwell Garnett en considérant différentes tailles de résonateurs. Pour cela, on part de la formule de Clausius-Mossotti pour plusieurs tailles de particules.

IV.1.1 Clausius-Mossotti pour plusieurs tailles de particules

Nous distinguons, dans ce qui suit, le cas où la fonction de distribution en taille des particules est discrète, et celui où elle est continue.

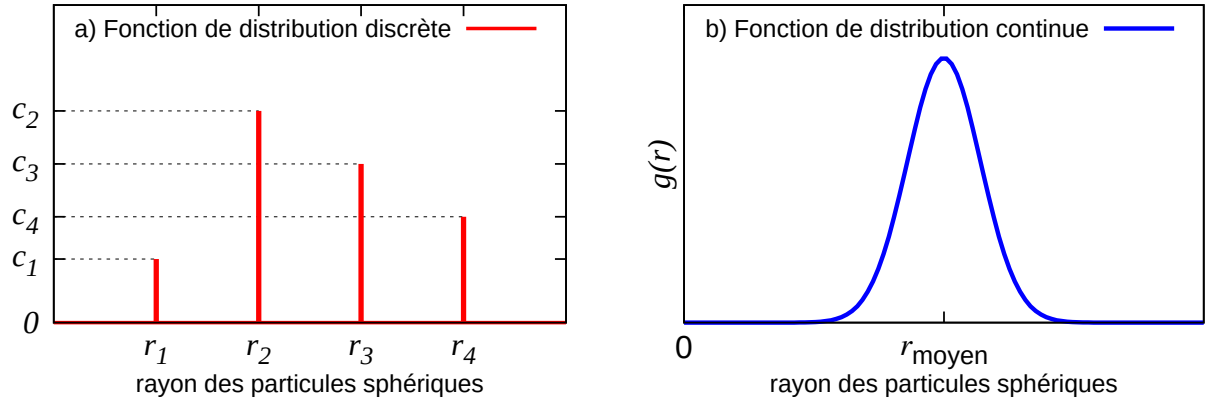

FIGURE IV.2 – Exemples de fonction de distribution. a) Fonction de distribution discrète avec $N = 4$ tailles distinctes. b) Fonction de distribution continue : distribution gaussienne centré sur le rayon r_{moyen} (distribution observable après une synthèse chimique).

IV.1.1-a Cas discret

Soit un matériau comportant des particules sphériques, distribuées selon N rayons r_k distincts ($k = 1,\ldots,N$), et ayant polarisabilités électriques α_k, et magnétiques β_k. Chaque type est présent avec une densité volumique c_k (voir FIGURE IV.2-a)). En supposant que les réponses de chaque type s'additionnent,

les formules de Clausius-Mossotti (II.44) pour décrire un tel matériau ont pour forme :

$$\frac{\varepsilon_{\text{eff}}-\varepsilon_{\text{h}}}{\varepsilon_{\text{eff}}+2\varepsilon_{\text{h}}}=\sum_{k=1}^{N}\frac{c_k\alpha_k}{3},\qquad \frac{\mu_{\text{eff}}-\mu_{\text{h}}}{\mu_{\text{eff}}+2\mu_{\text{h}}}=\sum_{k=1}^{N}\frac{c_k\beta_k}{3} \tag{IV.2}$$

qui peuvent être réécrites :

$$\varepsilon_{\text{eff}}=\varepsilon_{\text{h}}\frac{3+2\sum\limits_{k=1}^{N}c_k\alpha_k}{3-\sum\limits_{k=1}^{N}c_k\alpha_k},\qquad \mu_{\text{eff}}=\mu_{\text{h}}\frac{3+2\sum\limits_{k=1}^{N}c_k\beta_k}{3-\sum\limits_{k=1}^{N}c_k\beta_k} \tag{IV.3}$$

IV.1.1-b Cas continu

Dans le cas d'une distribution continue de la taille des particules, on peut définir la fonction de distribution de taille g normée (voir FIGURE IV.2-b)) :

$$\int_0^\infty g(r)\mathrm{d}r=1 \tag{IV.4}$$

La densité volumique $\mathrm{d}c(r)$ de particules de rayon compris entre r et $r+\mathrm{d}r$ dans le matériau est définie comme :

$$\mathrm{d}c(r)=c_{\text{tot}}g(r)\,\mathrm{d}r \tag{IV.5}$$

avec c_{tot} la densité volumique totale de particules.
Avec la meme hypothèse d'additivité, les expressions de Clausius Mossotti pour un tel matériau sont données par :

$$\frac{\varepsilon_{\text{eff}}-\varepsilon_{\text{h}}}{\varepsilon_{\text{eff}}+2\varepsilon_{\text{h}}}=c_{\text{tot}}\int_0^\infty\frac{g(r)\alpha(r)}{3}\,\mathrm{d}r,\qquad \frac{\mu_{\text{eff}}-\mu_{\text{h}}}{\mu_{\text{eff}}+2\mu_{\text{h}}}=c_{\text{tot}}\int_0^\infty\frac{g(r)\beta(r)}{3}\,\mathrm{d}r \tag{IV.6}$$

où $\alpha(r)$, $\beta(r)$ sont respectivement les polarisabilités électrique et magnétique des particules de rayon r. Ces expressions peuvent être récrites sous la forme suivante :

$$\varepsilon_{\text{eff}}=\varepsilon_{\text{h}}\frac{3+2c_{\text{tot}}\int_0^\infty g(r)\alpha(r)\mathrm{d}r}{3-c_{\text{tot}}\int_0^\infty g(r)\alpha(r)\mathrm{d}r},\qquad \mu_{\text{eff}}=\mu_{\text{h}}\frac{3+2c_{\text{tot}}\int_0^\infty g(r)\beta(r)\mathrm{d}r}{3-c_{\text{tot}}\int_0^\infty g(r)\beta(r)\mathrm{d}r} \tag{IV.7}$$

IV.1.2 Maxwell Garnett étendu pour plusieurs tailles de particules

Pour obtenir la formulation de Maxwell Garnett étendue, on procède comme dans le cas monodisperse en remplaçant les polarisabilités par celle d'un dipôle.

IV.1.2-a Cas discret

Dans le cas discret on utilise :

$$\alpha_k=6\pi i a_1(r_k)\frac{r_k^3}{\tau_k^3},\qquad \beta_k=6\pi i b_1(r_k)\frac{r_k^3}{\tau_k^3} \tag{IV.8}$$

et on définit la fraction volumique partielle f_k de chaque taille de sphères :

$$f_k = \frac{4}{3}\pi r_k^3 c_k. \tag{IV.9}$$

On en déduit les expressions des paramètres effectifs de Maxwell Garnett suivantes :

$$\varepsilon_{\text{eff}} = \varepsilon_{\text{h}} \frac{1 + \sum_{k=1}^{N} \frac{3 i f_k a_1(r_k)}{\varepsilon_{\text{h}} \tau_k^3}}{1 - \sum_{k=1}^{N} \frac{3 i f_k a_1(r_k)}{2\varepsilon_{\text{h}} \tau_k^3}}, \qquad \mu_{\text{eff}} = \mu_{\text{h}} \frac{1 + \sum_{k=1}^{N} \frac{3 i f_k b_1(r_k)}{\varepsilon_{\text{h}} \tau_k^3}}{1 - \sum_{k=1}^{N} \frac{3 i f_k b_1(r_k)}{2\varepsilon_{\text{h}} \tau_k^3}} \tag{IV.10}$$

IV.1.2-b Cas continu

Dans le cas continu :

$$\alpha(r) = 6\pi i a_1(r) \frac{r^3}{\tau^3}, \qquad \beta(r) = 6\pi i b_1(r) \frac{r^3}{\tau^3} \tag{IV.11}$$

Dans le cas d'un distribution continue, on ne peut pas exprimer la fraction volumique partielle f_k comme dans le cas d'une distribution discrète. Seule la fraction volumique totale est exprimable :

$$f_{\text{tot}} = \int_0^\infty \frac{4}{3}\pi c_{\text{tot}} g(r) r^3 \, \mathrm{d}r \tag{IV.12}$$

IV.2 Propriétés magnétiques d'un système avec deux tailles de sphères distinctes

Nous étudions tout d'abord le problème dans sa configuration la plus simple, avec deux tailles distinctes de sphères dans le milieu, en examinant le comportement de la perméabilité effective lorsqu'on change l'écart entre les rayons des sphères. Dans la suite, nous considèrerons la permittivité des sphères comme constante et, égale à la permittivité de TiO_2 à 300 GHz : $\varepsilon_{\text{p}} = 93,336 + 0.778i$.
Les courbes obtenues à partir de (IV.10) pour des sphères de tailles aux alentours de 50 µm avec des fractions volumiques $f_1 = f_2 = 5\%$ sont présentés sur la FIGURE IV.3. Nous voyons, comme on peut s'y

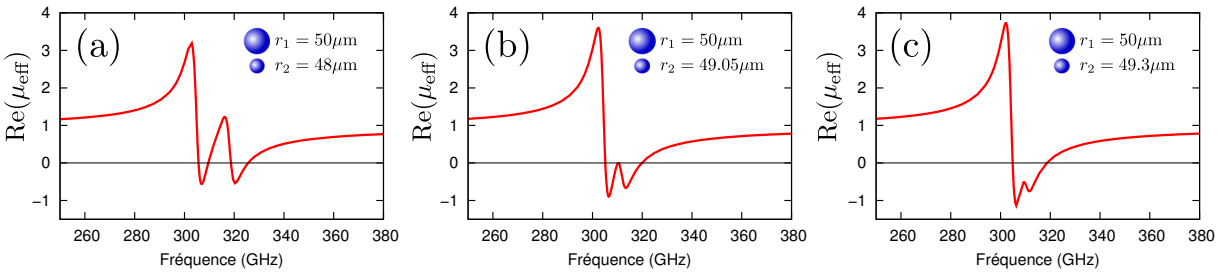

FIGURE IV.3 – Valeur de la permittivité réelle pour des milieux composites constitués de deux tailles de sphères r_1 et r_2. La fraction volumique totale est de 10 % et chaque population est concentrée a 5%.

attendre, que lorsque les rayons sont très différents (cas (a)), les résonances sont bien séparées et s'additionnent individuellement. En rapprochant les rayons (de gauche à droite sur la figure), on rapproche fréquentiellement les résonances qui s'interpénètrent et vont progressivement se fondre pour ne donner qu'une seule résonance ; enfin, quand elles ont lieu sur la même gamme de fréquence, on observe une

augmentation de la profondeur de résonance.

Pour répondre à la question du moment à partir duquel la distribution en taille est néfaste aux « méta-propriétés » du système, une réponse simple est de calculer la configuration à partir de laquelle la région de perméabilité négative commence à se scinder en deux (cas (b) de la FIGURE IV.3). Dès lors, les particules de différents types ne répondent plus collectivement (elles n'additionnent plus leurs « parties négatives » les une aux autres), et la polydispersité devient néfaste.

IV.2.1 Critère pour élargir la zone négative

Nous cherchons maintenant à établir le critère qui détermine si la réponse des deux types de sphères donne une seule zone négative (effet bénéfique de la polydispersité), ou donne des zones négatives séparées (effet néfaste de la polydispersité). Nous cherchons donc quelles conditions dans l'équation (IV.3) induisent un changement de signe dans la partie réelle de la perméabilité. L'équation (IV.3) peut être réécrite de la façon suivante :

$$\mu_{\text{eff}} = \mu_{\text{h}} \frac{3 + 2\sum_{k=1}^{N} c_k \beta_k}{3 - \sum_{k=1}^{N} c_k \beta_k} \tag{IV.13}$$

On sépare la partie réelle η et imaginaire δ de la somme des polarisabilités :

$$\eta + i\delta = \sum_{k=1}^{N} c_k \beta_k \tag{IV.14}$$

en développant dans l'équation (IV.13) et après réarrangement, on obtient :

$$\mu_{\text{eff}} = \mu_{\text{h}} \left[\frac{9 + 3\eta - 2\eta^2 - 2\delta^2}{(3-\eta)^2 + \delta^2} + i \frac{9\delta}{(3-\eta)^2 + \delta^2} \right] \tag{IV.15}$$

En supposant que le milieu-hôte a une perméabilité μ_{h} réelle, le premier terme du membre de droite de (IV.15) donne la partie réelle de μ_{eff}. Puisque le dénominateur de $\text{Re}(\mu_{\text{eff}})$ est toujours positif, son signe est donné par le signe de son numérateur, qu'il nous faut étudier.
Le numérateur de $\text{Re}(\mu_{\text{eff}})$ se présente sous la forme d'un polynôme de degré 2 en η et δ dont les racines donnent les couples de valeurs $\{\eta_i, \delta_i\}$ pour lesquelles $\text{Re}(\mu_{\text{eff}})$ change de signe :

$$9 + 3\eta - 2\eta^2 - 2\delta^2 = 0 \tag{IV.16}$$

Pour un niveau de pertes δ fixé, on trouve les racines $\eta(\delta)$ suivantes :

$$\eta = \frac{3}{4} \pm \frac{1}{4}\sqrt{81 - 16\delta^2} \tag{IV.17}$$

Par définition, η est un nombre réel, ainsi, pour que ces racines existent et que la partie réelle de μ_{eff} puisse changer de signe, il faut que le terme à l'intérieur de la racine carrée soit positif : $81 - 16\delta^2 > 0$, soit

$$\delta < 2{,}25 \tag{IV.18}$$

Un second, et non moins utile, critère peut aussi être extrait quand on considère des particules sans pertes

($\delta = 0$). Les racines de l'équation (IV.17) deviennent :

$$\eta = -\frac{3}{2} \quad \text{ou} \quad 3 \qquad (\delta = 0) \tag{IV.19}$$

La fonction $\delta = \delta(\nu)$ dépend de la fréquence ν ; nous verrons dans le prochain exemple que loin de la résonance, les pertes sont près de 0 et le critère de l'équation (IV.19) nous permet alors de prédire de manière simple le changement de signe de $\mathrm{Re}(\mu_{\mathrm{eff}})$.

En conclusion de cette étude analytique, on voit que les changements de signe de $\mathrm{Re}(\mu_{\mathrm{eff}})$, et donc l'allure de la zone de perméabilité négative, dépendent du niveau global de pertes δ. Comme nous allons le détailler dans la suite, δ dépend essentiellement de l'écart entre les rayons des particules.

IV.2.2 Application à un exemple concret

Nous ré-examinons ici les exemples illustratifs de la FIGURE IV.3 à la lumière de l'étude analytique précédente. Nous prenons en exemple un matériau composite fait de sphères non-magnétiques de permittivité $\varepsilon_{\mathrm{p}} = 93,336 + 0.778i$ et de rayons $\{r_1, r_2\}$, aléatoirement dispersées à la fraction volumique $\{f_1 = f_2 = 5\%\}$, dans un milieu hôte de paramètres $\varepsilon_{\mathrm{h}} = \mu_{\mathrm{h}} = 1$.
Considérons maintenant, le comportement de la partie réelle de la perméabilité effective $\mathrm{Re}(\mu_{\mathrm{eff}})$ ainsi que des paramètres δ et η, pour différentes valeurs de $\{r_1, r_2\}$: pour chaque couple de valeurs $\{r_1, r_2\}$, nous examinons les changements de signe de $\mathrm{Re}(\mu_{\mathrm{eff}})$ sur les courbes issues de la résolution numérique de l'équation (IV.13) et les confrontons aux critères établis au paragraphe précédent.

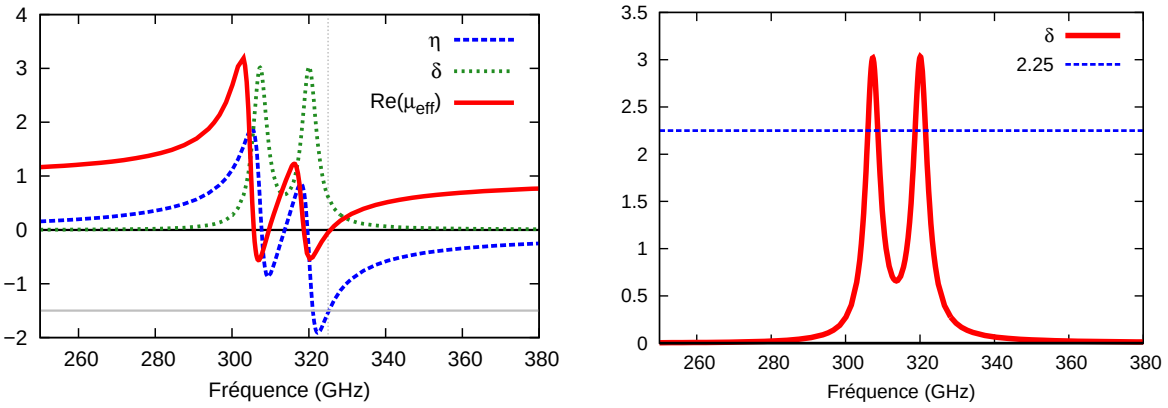

FIGURE IV.4 – Courbes pour illustrer les critères (IV.18) (à gauche) et (IV.19) (à droite). La perméabilité effective ainsi que les fonctions η et δ sont représentées pour un matériau composés de sphères de TiO_2 de permittivité $\varepsilon_{\mathrm{p}} = 93,336 + 0.778i$, de rayons $r_1 = 50$ et $r_2 = 48\,\mu\mathrm{m}$ et avec une fraction volumique $f_1 = f_2 = 5\%$.

Le premier cas considéré est représenté sur la FIGURE IV.4 et correspond à des sphères de rayons relativement éloignés $r_1 = 50$ et $r_2 = 48\,\mu\mathrm{m}$. Sur le graphe de droite, nous avons tracé δ en fonction de la fréquence, et on constate qu'il existe trois intervalles où $\delta < 2,25$, on attend donc plusieurs changements de signe de $\mathrm{Re}(\mu_{\mathrm{eff}})$: nous observons en effet quatre changements de signe sur la figure de gauche. De plus, le dernier changement de signe, aux alentours de 325 GHz vérifient le critère de l'équation (IV.19), à savoir δ petit et $\eta \approx -1,5$. On remarque également, comme attendu, qu'aux alentours de 320 GHz,

$\eta \approx -1,5$, mais à cause des pertes δ supérieures à 2,25, on n'observe pas de changement de signe.
Cette exemple représente donc un cas « néfaste » de l'effet de la distribution en taille (2 zones négatives séparées) car l'écart entre rayons est trop grand.

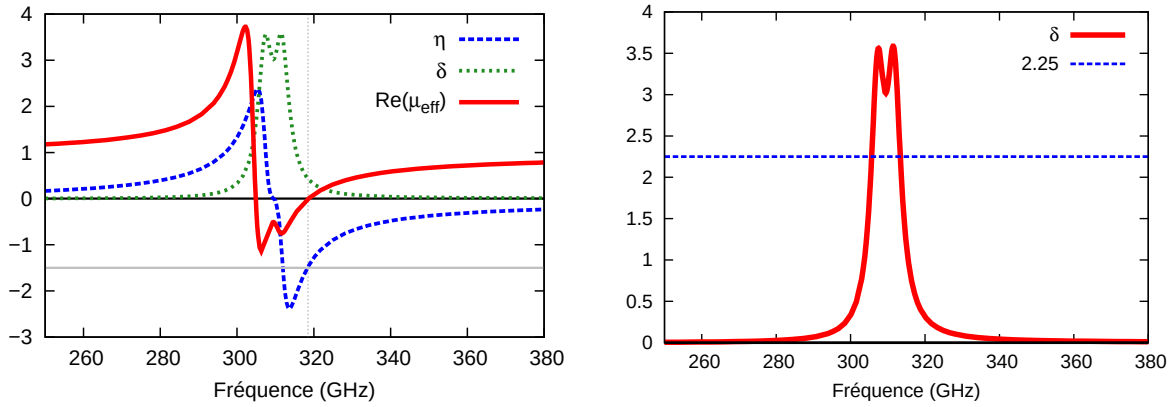

FIGURE IV.5 – Courbes pour illustrer les critères (IV.18) (à gauche) et (IV.19) (à droite). La perméabilité effective ainsi que les fonctions η et δ sont représentés en fonction de la fréquence pour un matériau composés de sphères de TiO_2 de permittivité $\varepsilon_p = 93,336 + 0.778i$, de rayons $r_1 = 50$ and $r_2 = 49,3$ µm et avec une fraction volumique $f_1 = f_2 = 5\%$.

Nous considérons maintenant le cas de sphères de rayons $r_1 = 50$ et $r_2 = 49,3$ µm représenté sur la FIGURE IV.5. Sur le graphe de droite, nous observons, par rapport au graphe équivalent de la FIGURE IV.4, que $\delta < 2,25$ seulement aux extrêmes de la bande de fréquence. Ainsi, sur le graphe de gauche, nous n'observons plus que deux changements de signe de $\mathrm{Re}(\mu_{\mathrm{eff}})$, dont le second à 319 GHz vérifient les deux conditions (IV.18) et (IV.19). Entre ces deux valeurs de fréquence , δ est supérieur à 2,25 et ainsi, les changements de signe sont interdits. Dans une telle configuration, la perméabilité effective présente une large zone de résonance, avec un élargissement relatif de la zone négative d'environ 8% par rapport au cas monodisperse.
Ce cas de figure représente donc un cas « bénéfique » de l'effet de la distribution en taille car la zone négative est unique et plus large.

Enfin le cas où la zone négative de $\mathrm{Re}(\mu_{\mathrm{eff}})$ est unique et, la plus large possible est représenté sur la FIGURE IV.6. Cette situation « optimale » se produit quand le niveau de pertes dans la zone de fréquence entre les fréquences de résonance des deux types de particules redescend juste à la valeur critique $\delta = 2,25$ (FIGURE IV.6 droite).
Dans ce cas, on n'a que deux changements de signe, et donc une seule région négative, mais de largeur maximale possible : l'élargissement est d'environ 17% par rapport au cas monodisperse. En conclusion, on voit que cette situation optimale est obtenue quand la différence de taille choisie telle que δ atteint juste 2,25 entre les résonances individuelles, mais sans passer en-dessous.

IV.2.3 Procédure d'optimisation de la largeur de la bande négative

L'ajustement des tailles du cas optimal de la section précédente peut être réalisé par itérations successives, mais aussi à l'aide d'une procédure basée sur le fait que δ doit atteindre tout juste 2,25 entre les résonances des particules individuelles.

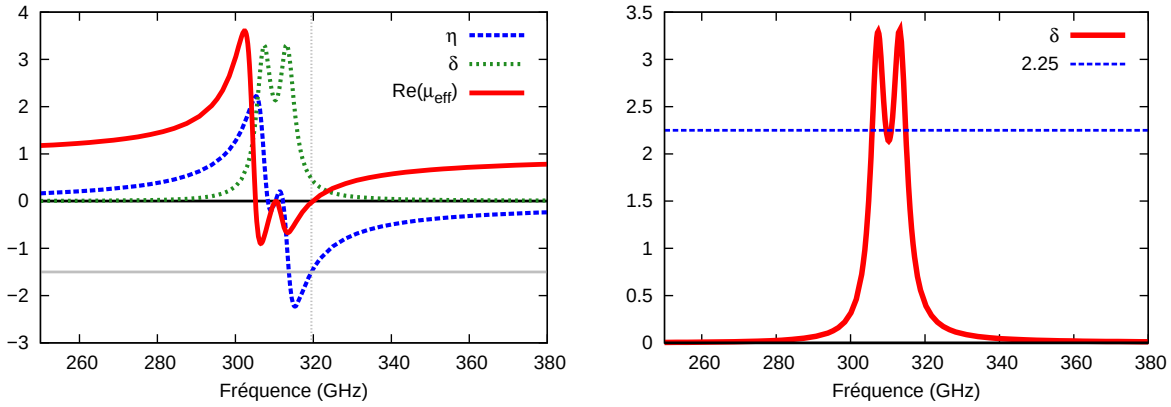

FIGURE IV.6 – Courbes pour illustrer les critères (IV.18) (à gauche) et (IV.19) (à droite). La perméabilité effective ainsi que les fonctions η et δ sont représentés en fonction de la fréquence pour un matériau composés de sphères de TiO_2 de permittivité $\varepsilon_p = 93,336 + 0.778i$, de rayons $r_1 = 50$ and $r_2 = 49,05$ µm et avec une fraction volumique $f_1 = f_2 = 5\%$.

Nous considérons maintenant N tailles de populations de sphères, constituées du même matériau, de rayon $\{r_1, \ldots, r_N\}$ chacune concentrée à la fraction volumique $f_k = f_{\text{tot}}/N$. La procédure présentée dans ce paragraphe est utilisée pour générer, à partir du choix de r_1, de manière rapide l'ensemble des rayons $\{r_2, \ldots, r_N\}$ donnant une zone négative de $\text{Re}(\mu_{\text{eff}})$ la plus large possible.
Son principe est le suivant : nous choisissons une taille r_1, et à l'aide de la condition (IV.18), nous calculons le rayon r_2 qui correspond à la situation optimale. À partir du rayon r_2 trouvé, nous reprenons le même principe pour trouver le rayon r_3 optimal, et la résolution s'effectue ainsi de proche en proche jusqu'à r_N. Il est important de noter que dans cette manière de procéder, nous considérons les contributions deux à deux (entre r_i et r_{i+1}) en négligeant l'effet de toutes les autres tailles. Cet approximation n'est valide que lorsque $N = 2$, et nous verrons les modifications a apporter à la procédure lorsque $N > 2$.

Nous montrons ici dans le cas $N = 2$, comment à partir du rayon r_1 obtenir le rayon r_2 optimal.
Pour $N = 2$, la fonction δ est donnée par :

$$\delta = \text{Im}(c_1\beta_1 + c_2\beta_2) \tag{IV.20}$$

En utilisant la formule (II.59) et la forme de Lewin (II.71) du coefficient magnétique dipolaire de Mie pour des milieux non magnétiques ($\mu_h = \mu_p = 1$), la polarisabilité magnétique devient :

$$\beta_k = 4\pi r_k^3 \frac{F(m\tau_k) - 1}{2 + F(m\tau_k)} \tag{IV.21}$$

En utilisant (IV.9), (IV.20) devient :

$$\delta = \text{Im}\left(3f_1 \frac{F(m\tau_1) - 1}{2 + F(m\tau_1)} + 3f_2 \frac{F(m\tau_2) - 1}{2 + F(m\tau_2)}\right) \tag{IV.22}$$

Comme nous l'avons mentionné, les fractions volumiques sont égales $f_1 = f_2 = f_{\text{tot}}/2$. Nous faisons maintenant l'approximation, pour écrire la procédure, que les permittivités sont constantes sur l'échelle de fréquence considérée et ainsi, le paramètre m est constant. Avec cette approximation, δ ne dépend plus

que de $\tau_i = \dfrac{2\pi n_h r_i}{\lambda_0}$, $i = 1,2$.
La condition optimale est réalisée si la somme des deux membres de IV.22 entre les résonances vaut la valeur critique : $\delta_{\text{critique}} = 2.25$. Pour écrire cette condition, nous utilisons la forme du membre de gauche de l'équation IV.22 pour trouver numériquement, les deux valeurs de τ : τ_{min} et τ_{max}, pour lesquelles :

$$\text{Im}\left(3f_1\frac{F(m\tau)-1}{2+F(m\tau)}\right) = \frac{\delta_{\text{critique}}}{2} \tag{IV.23}$$

où $\delta_{\text{critique}} = 2.25$.
À l'aide de ce $\Delta\tau = \tau_{max} - \tau_{min}$ trouvé, nous pouvons, en choisissant r_1, connaître la valeur de r_2 pour que la somme des deux termes dans (IV.22) vaille 2,25, entre les résonances. C'est avec cette procédure que nous avons générer les rayons pour la FIGURE IV.6.

Ainsi que nous l'avons dit en introduction lorsque $N > 2$, la procédure perd son efficacité puisque les contributions entre voisins éloignés sont négligés. Pour contrebalancer cet effet, on peut abaisser de manière empirique le δ_{critique} jusqu'à observer une largeur maximale de la zone de $\text{Re}(\mu_{\text{eff}})$ négative.

IV.3 Configuration optimale pour plusieurs tailles de particules

Dans la section précédente, nous avons compris comment se comporte la partie réelle de la perméabilité quand plusieurs tailles de sphères sont présentes dans le milieu hôte. Nous avons aussi trouvé un critère pour optimiser la largeur de la bande négative dans le cas de deux tailles de résonateurs. Nous considérons dans cette partie, l'effet de distributions en tailles discrètes et continues sur la partie réelle de la perméabilité effective. Nous montrerons dans chacun des cas, la distribution en taille optimale, c'est-à-dire, celle donnant la zone de $\text{Re}(\mu_{\text{eff}})$ la plus large possible.
Dans cette section, en raison de la lourdeur des calculs, nous avons utilisé la forme de Lewin (II.71) du coefficient magnétique dipolaire de Mie dans l'équation (IV.8) ou (IV.11).

IV.3.1 Distribution discrète

Nous voulons réaliser la zone de perméabilité négative la plus large possible, en utilisant un ensemble de N tailles de sphères différentes, chacune concentrées à la même fraction volumique f_k. Pour cela, nous reprenons la même condition (IV.18) et nous utilisons la même procédure que précédemment, pour générer l'ensemble des rayons $\{r_1, r_2, \ldots, r_N\}$.
À titre de remarque, la procédure utilisé pour générer l'ensemble des tailles de sphères est optimisé pour $N = 2$. Quand on augmente N, on doit changer la valeur seuil de δ pour prendre en compte les contributions entre les r_i et r_{i+j} pour j entier et différent de 1.
Nous montrons, le résultat pour $N = 10$, des rayons de sphères aux alentours de $r = 50\,\mu$m, et une fraction volumique totale de 10% sur la FIGURE IV.7. Le calcul a été effectué en utilisant la formule (IV.10) avec des tailles de sphères (montrées dans la cartouche de la FIGURE IV.7) allant de 50 à $47,8\,\mu$m chacune avec une fraction volumique partielle de $f_k = 1\%$. Le matériau a pour permittivité celle de TiO_2 prise à 300 GHz ($\varepsilon_p = 93,336 + 0.7784i$). La fonction δ reste supérieure à 2,25 entre le premier et le dernier changement de signe de $\text{Re}(\mu_{\text{eff}})$, assurant ainsi l'impossibilité d'un changement de signe supplémentaire. Cela se traduit sur $\text{Re}(\mu_{\text{eff}})$ par une zone négative très "étalée" en fréquence : dans le cas montré sur FIGURE IV.7, l'élargissement de la bande négative est d'environ 35% par rapport au cas monodisperse.

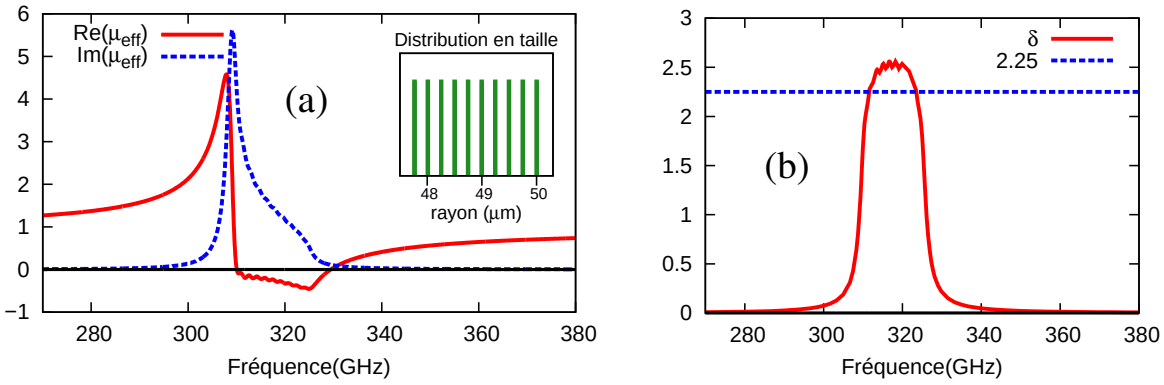

FIGURE IV.7 – Perméabilité effective (a), et fonction δ (b), pour un matériau constitué de 10 tailles de sphères de TiO_2, chacune concentrées à une fraction volumique de 1%. La distribution en taille est représentée dans le cartouche.

Une autre propriété intéressante que l'on observe sur cette figure est le fait que la perméabilité est proche de zéro sur une large gamme de fréquence. Bien sûr, ces propriétés intéressantes pour la partie réelle sont accompagnés, en contrepartie, d'un élargissement conséquent de la zone où les pertes sont fortes.

IV.3.2 Distribution continue

IV.3.2-a Distribution en créneau

En prenant la limite du cas précédent quand $N \to \infty$, on obtient une fraction volumique en créneau comme présenté sur la FIGURE IV.8. Dans ce cas, d'après les équations (IV.4) et (IV.12), la fonction de

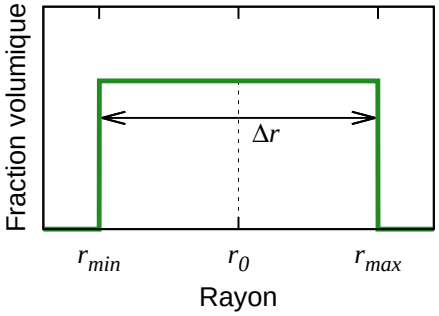

FIGURE IV.8 –

distribution $g(r)$ centrée sur r_0 est donnée par :

$$g(r) = \begin{cases} \dfrac{2r_{max}^2 r_{min}^2}{r_{max}^2 - r_{min}^2} \cdot \dfrac{1}{r^3} & \text{si} \quad r_{min} < r < r_{max} \\ \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \tag{IV.24}$$

Nous avons calculé la perméabilité effective en utilisant l'équation (IV.7) et (IV.11) pour ce type de fonction de distribution en utilisant différentes largeur Δr. Nous représentons sur la FIGURE IV.9, la per-

méabilité effective, présentant une zone de perméabilité négative de largeur $\Delta\nu$, pour une fonction de distribution en créneau de largeur Δr (représenté dans le cartouche). Le matériau et les fractions volu-

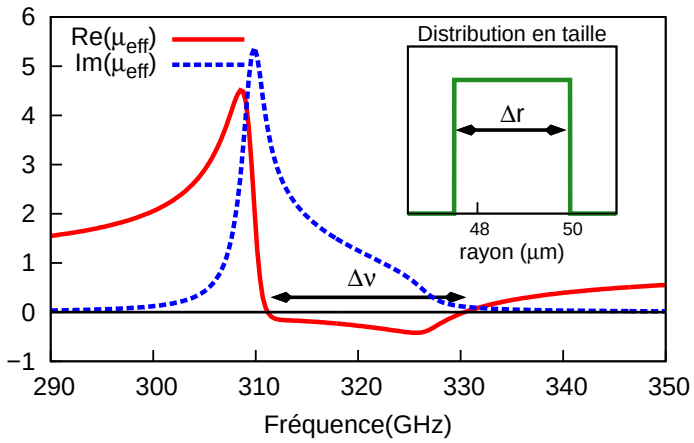

FIGURE IV.9 – Perméabilité pour une fonction de distribution créneau. Les sphères sont faites de matériau diélectrique, non-magnétique de permittivité $\varepsilon_p = 93,336 + 0.7784i$ et $f_{tot} = 10\%$.

miques sont les mêmes que dans le paragraphe précédent. Nous observons une zone négative large, plate et proche de zéro pour la partie réelle de μ_{eff}. Ce cas de figure correspond au $\Delta\nu$ maximal que nous ayons calculé et l'élargissement relatif de la bande et d'environ 35% par rapport au cas monodisperse.

Pour comprendre l'effet d'une distribution en créneau sur la largeur de la zone négative, nous avons tracé, sur la FIGURE IV.10, la largeur de la zone négative $\Delta\nu$ en fonction de la largeur relative de la distribution en créneau $\Delta r/r_0$ pour des fractions volumiques totales allant jusqu'à 20%. Premièrement,

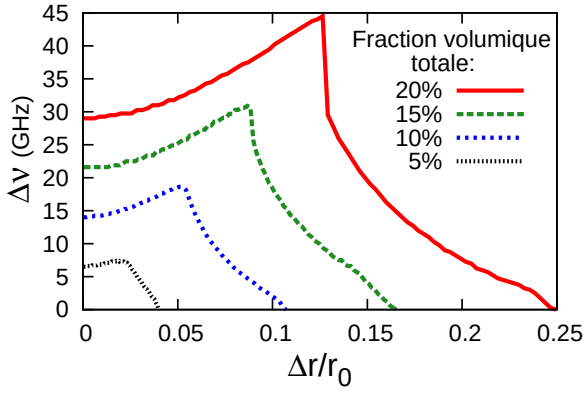

FIGURE IV.10 – Largeur de résonance en fonction de la largeur relative de la distribution en créneau ($r_0 = 50\,\mu$m) pour des fractions volumiques allant de 5 à 20 %. Les sphères sont constitués du même matériau que dans la FIGURE IV.9.

on se rend bien compte qu'il existe un $\Delta r/r_0$ limite au-delà duquel $\Delta\nu = 0$: les effets de la distribution en taille sont trop importants pour observer une zone négative. En deçà de cette limite, et à partir du moment où la fraction volumique globale est suffisamment haute, il existe un intervalle Δr dans lequel les effets de distribution en taille peuvent permettre un élargissement de la bande de perméabilité négative. Cet

élargissement peut atteindre des valeurs de 55% par rapport au cas monodisperse (fraction volumique de 20 %).

IV.3.2-b Distribution gaussienne

Le second type de distribution que nous avons considéré sont les distributions gaussiennes en taille, importante à nos yeux, puisqu'elles sont sont susceptibles de découler d'une synthèse chimique. La

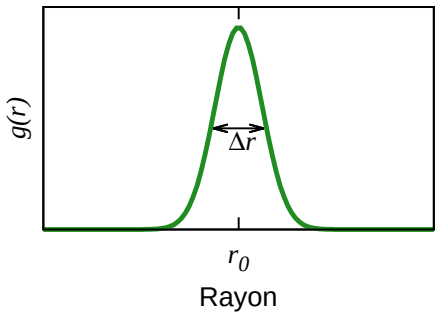

FIGURE IV.11 – Fonction de distribution gaussienne centrée sur r_0 et de largeur Δr.

fonction de distribution gaussienne, représentée sur la FIGURE IV.11 est donnée par :

$$g(r) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(r-r_0)^2}{2\sigma^2}\right) \tag{IV.25}$$

Nous avons choisi de définir la largeur de distribution comme la largeur à mi-hauteur de la gaussienne : $\Delta r = 2\sqrt{2\ln 2}\sigma$. Comme précédemment, nous calculons la perméabilité effective ((IV.7) et (IV.11)) pour différentes valeurs de la largeur à mi-hauteur Δr. Le résultat pour une distribution avec $r_0 = 50\,\mu$m, et $\Delta r = 3,5\,\mu$m est représenté sur la FIGURE IV.12. Comme pour les distributions en créneau, il existe

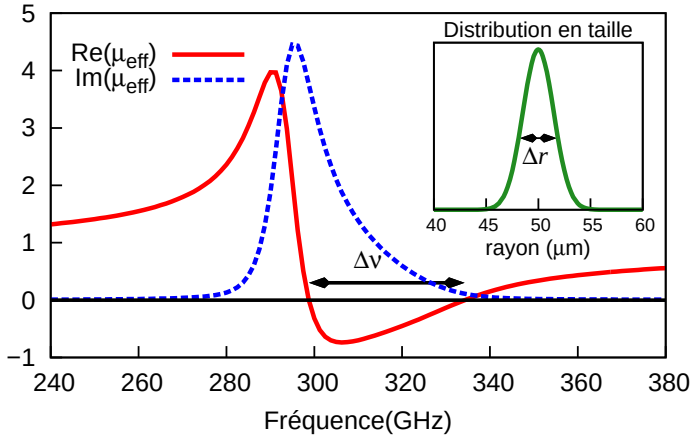

FIGURE IV.12 – Perméabilité pour une fonction de distribution gaussienne. Les sphères sont faites de matériau diélectrique, non-magnétique de permittivité $\varepsilon_p = 93,336 + 0.7784i$ et $f_{tot} = 20\%$.

une gamme Δr pour laquelle la zone de perméabilité négative s'élargit. Nous avons tracé sur la FIGURE

IV.13, la largeur de la zone négative $\Delta\nu$ observée en fonction de la largeur relative de la distribution de la gaussienne $\Delta r/r_0$ pour des fractions volumiques totales allant jusqu'à 20%. On remarque que avec ce

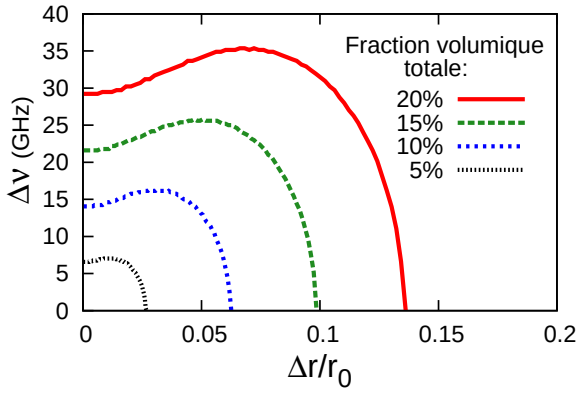

FIGURE IV.13 – Largeur de résonance en fonction de la largeur relative de la distribution gaussienne ($r_0 = 50\,\mu$m) pour des fractions volumiques allant de 5 à 20 %. Les sphères sont constitués du même matériau que dans les figures précédentes.

type de distribution, l'élargissement de la zone négative est moins important que pour une distribution en créneau. Cela s'explique facilement par le fait dans les « ailes » de la gaussienne la fraction volumique n'est pas assez forte pour donner naissance à une perméabilité négative. Ce type de distribution en taille n'est pas optimisé mais il est utile de connaître la limite de distribution en taille acceptable pour observer une réponse magnétique négative car ce genre de distribution est possible à l'issu d'une synthèse chimique.

IV.4 Conclusions

Dans cette partie, nous avons compris comment, selon la théorie de Maxwell Garnett, s'ajoute les contributions des différentes tailles de sphère dans la perméabilité effective. Nous avons extrait des conditions analytiques, qui permettent de générer de large zone de perméabilité négative et proche de zéro, en choisissant de manière appropriée la distribution discrète ou continue de tailles de résonateurs. Pour des fractions volumiques suffisamment élevée, l'élargissement peut atteindre des valeurs de 55% par rapport au cas monodisperse. Ces calculs nous permettent aussi de connaître le désordre maximal à ne pas dépasser pour conserver une zone de perméabilité négative et ainsi pourraient servir de guide lors d'une synthèse chimique.

Bien sûr, ces calculs sont uniquement analytiques et des simulations numériques seraient nécessaires pour vérifier un tel comportement. Cependant, la FEM qu'utilise notre logiciel de simulation HFSS est très gourmande en ressources ce qui rend quasiment impossible la simulation de systèmes aléatoires non périodisable.

En résumé, selon notre étude, nous pouvons dire que la polydispersité a deux effets majeurs : en faible quantité, elle provoque un élargissement de la zone négative, jusqu'à une valeur critique. Au-delà de cette valeur critique, la fraction volumique de chaque taille n'est plus assez élevée et la zone de perméabilité négative disparaît de manière rapide. Ce comportement a déjà été observé pour les systèmes désordonné de SRRs [112, 113, 114, 115], et en particulier, les auteurs de [115] montrent à partir d'expérience, de simulations et de calculs théoriques sur des réseaux de SRRs désordonnés des résultats similaires aux nôtres. Nous pouvons ainsi présumer que ces effets ne s'appliquent pas seulement à nos systèmes, mais aussi à tout milieu effectif dont la résonance dépend de la taille.

Pour finir, on peut imaginer exploiter le phénomène d'élargissement décrit dans ce paragraphe grâce à un bon contrôle de la dispersion en taille des résonateurs ; par exemple en utilisant des SRRs fabriqués par techniques de litographie de diverses tailles comme dans [115], on peut envisager de créer de larges zones de de perméabilité négative grâce à un bon contrôle de la taille de ces SRRs.

Chapitre V

Assemblages denses de sphères bidisperses

Dans ce chapitre, nous poursuivons nos travaux en cherchant à rajouter à la perméabilité négative obtenue dans les chapitres précédents, un effet de permittivité négative dans la même gamme de fréquence, dans le but d'obtenir un matériau à indice effectif négatif. Nous étudions pour cela des arrangements bidisperse de sphères diélectriques placées dans le vide ($\varepsilon_h = \mu_h = 1$).

V.1 Principe et travaux antérieurs

La première proposition pour réaliser des DNG à bases de structures périodiques bidisperses de sphères diélectriques a été proposé par Vendik et al. dans [45]. Leur idée est d'étudier des structures ordonnées de sphères du même matériau mais avec une population de grandes billes et une population de petites billes, dans une proportion relative à déterminer. En ajustant correctement les tailles relatives des sphères dans ces arrangements, on peut observer que la résonance dipolaire électrique des grandes sphères a lieu à la même fréquence que la résonance magnétique dipolaire des petites sphères (voir FIGURE V.1). Ainsi, les auteurs considèrent dans [45] une structure bidisperse de sphères idéales formée de deux sous-réseaux cubiques imbriqués (un sous-réseau par type de bille), le matériau constitutif des sphères étant un matériau de permittivité égale à 1000 dans un milieu-hôte de permittivité égale à 10. Ils montrent, en utilisant le formalisme de Lewin, que pour des sphères de 100 et de 70.5 μm de rayons concentrées à une fraction volumique de 3,4 et 1,2%, respectivement, que la superposition des résonances électriques et magnétiques donne naissance à une bande d'indice négatif autour de 67 GHz. Ils vérifient bien, par simulation FDTD et extraction des paramètres effectifs, que l'indice est négatif à une fréquence proche de 67 GHz.

Le modèle de Lewin montrant des imprécisions, comme nous l'avons signalé dans la section II.2.4-e, deux autres modèles furent proposés. Le premier, nommé « modèle de diffraction » fut élaboré par Vendik et al. [116], et est basé sur le calcul du champ moyen diffusé par l'ensemble des sphères considérées comme des diffuseurs dipolaires de Mie. Le second, exposé à la même époque par Jylhä et al. [46], est basée sur la formule généralisée de Clausius Mossotti, en tenant compte la contribution électriques des petites sphères.

La comparaison des 3 modèles est effectuée dans [117], où Vendik et al. montrent que les fréquences de résonances ainsi que les amplitudes données par le modèle de Lewin, le modèle de diffraction et celui de [46] diffèrent légèrement. En comparant, les fréquences des bandes d'indice négatif pour ces trois modèles avec les simulations FDTD, ils en déduisent que leur modèle (de diffraction) est celui qui donne la fréquence de résonance de manière la plus précise.

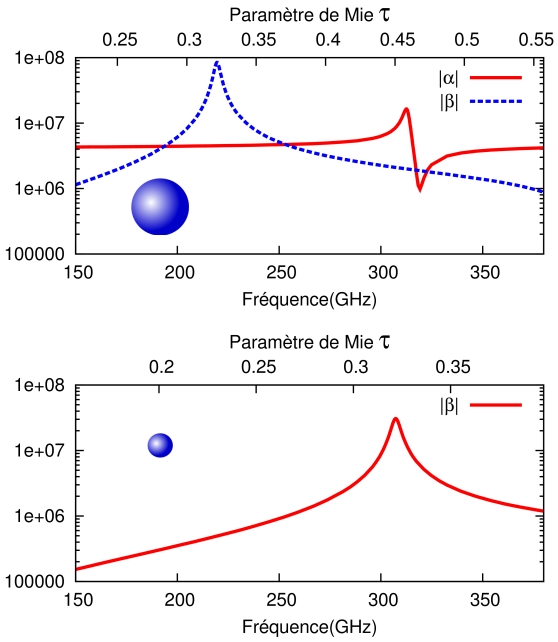

FIGURE V.1 – Principe de fonctionnement des arrangement bi-disperses de sphères. La polarisabilité électrique α et magnétique β sont représentées en fonction de la fréquence, pour des tailles de sphères ajustées afin que la résonance magnétique des petites ait lieu à la même fréquence que la résonance électrique des grandes (courbes en trait plein).

En utilisant ce dernier modèle, ils étudient, dans [117] puis dans [118], l'influence de la partie réelle et imaginaire de la permittivité du matériau constitutif sur la largeur de résonance ainsi que, pour les systèmes de sphères présentant une distribution en taille, la largeur maximale permettant de garder un indice négatif de manière expérimentale. Ils montrèrent expérimentalement dans [119] qu'en utilisant des céramiques de type BST de permittivité $\varepsilon = 378$ et pertes de $\tan(\delta) \approx 0.004$ d'une seule taille (avec une très faible dispersion en taille), on obtient bien les résonances de perméabilité et permittivité aux fréquences attendues.
Les modèles utilisés pour décrire ces arrangement bidisperses négligent les interactions entre sphères et ainsi les réseaux considérés dans ces premières publications sont des réseaux à symétrie cubique. Les premiers réseaux envisagés ont été de types NaCl mais, Vendik et al. remarquent que la résonance électrique est plus faible que la magnétique et proposent d'utiliser des systèmes de type CsCl dans [119] pour renforcer la première. Ils finalisent ces travaux sur les réseaux bidisperses avec une structure CsCl, dans [120]. En considérant des sphères de 1.05 µm et de 0.748 µm de rayons de céramiques diélectriques de permittivité $\mathrm{Re}(\varepsilon_p) = 400$, de pertes $\tan(\delta) < 0,003$ et une fraction volumique totale de $f = 10,32\%$, ils montrent analytiquement et à partir d'une analyse des spectres de transmission issus des simulations FDTD que l'indice est négatif aux alentours de 10 GHz.

L'objectif de ce chapitre est de reprendre ce principe pour l'appliquer à la gamme THz. Comme nous l'avons vu dans le chapitre III, les propriétés diélectriques des matériaux de haute permittivité de la gamme THz sont beaucoup moins bonnes (pertes élevées) que celles des matériaux utilisés dans les publications citées ci-dessus. Nous verrons que l'obtention d'un indice négatif à ces fréquences constitue, dans ces conditions, un défi à cause des fractions volumiques élevées nécessaires.
Dans ce qui suit, nous commençons par nous intéresser à la manière de produire une permittivité effective

négative avec des sphères de TiO_2. Puis nous verrons, selon la théorie de Maxwell Garnett, dans quelles conditions on peut obtenir un indice effectif négatif avec des arrangements bidisperses de ces sphères. Dans un second temps, nous menons des simulations numériques sur les structures, afin de comparer leurs résultats aux prédictions analytiques. Une analyse plus fine en termes de modes de Bloch est alors mise en œuvre afin de déterminer les valeurs de l'indice effectif.

V.2 Prédictions analytiques

V.2.1 Obtention d'une permittivité effective négative avec des sphères de TiO_2

V.2.1-a Position de la résonance dipolaire électrique de Mie

Nous souhaitons engendrer une permittivité effective négative en utilisant la résonance électrique dipolaire de Mie. Comme nous l'avons vu à la section III.1.1, le coefficient dipolaire électrique est donné par :

$$a_1 = \frac{m\psi_1(m\tau)\psi_1'(\tau) - \psi_1(\tau)\psi_1'(m\tau)}{m\psi_1(m\tau)\xi_1'(\tau) - \xi_1(\tau)\psi_1'(m\tau)} \tag{V.1}$$

et possède une résonance dictée par $\psi_1(m\tau)$:

$$\psi_1(m\tau) = \frac{\sin(m\tau)}{m\tau} - \cos(m\tau) \tag{V.2}$$

En première approximation, la résonance fondamentale de ce coefficient, peut être écrite $\mathrm{Re}(\tau \cdot m) \approx \frac{3\pi}{2}$ où nous rappelons que $\tau = \frac{2\pi n_\mathrm{h} r}{\lambda_0}$ et $m = \frac{n_\mathrm{p}}{n_\mathrm{h}}$. En reprenant le même calcul qu'à la section III.1.2, on en déduit le rapport entre la longueur d'onde à l'intérieur de la particule $\lambda_\mathrm{p} = \frac{\lambda_0}{\mathrm{Re}(n_\mathrm{p})}$ et le diamètre de la sphère $d = 2r$ à la résonance vaut $\frac{2\pi r}{\lambda_\mathrm{p}} \approx \frac{3\pi}{2}$, soit :

$$\lambda_\mathrm{p} \approx \frac{2}{3} d \tag{V.3}$$

La condition de résonance est schématiquement représentée sur la FIGURE V.2 et correspond à l'ordre fondamental de la seconde résonance de cavité de la sphère.

Cette approximation permet de prédire simplement la position de la résonance électrique dipolaire de

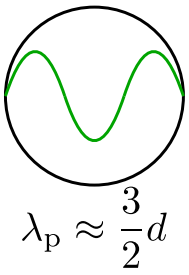

FIGURE V.2 – Résonance dipolaire électrique fondamentale de Mie

la sphère a_1, mais pour des calculs plus précis nous utiliserons la position exacte du premier zéro de

$|\psi_1(m\tau)|$, qui est donnée par la condition (pour un matériau réel) :

$$\mathrm{Re}(\tau \cdot m) \approx 4,44 \tag{V.4}$$

c'est-à-dire :

$$\lambda_p \approx 0,708 \cdot d \tag{V.5}$$

V.2.1-b Permittivité effective selon le modèle de Maxwell Garnett étendu

Dans cette section, nous reprenons, pour la permittivité, les calculs de la théorie de Maxwell Garnett que nous avons effectué dans le chapitre précédent pour la perméabilité. Nous utilisons maintenant la formule de Maxwell Garnett étendue (II.60), pour calculer la permittivité effective d'un métamatériau composés dune seule taille de sphères diélectriques de TiO_2 incluses dans un milieu hôte de paramètres $\varepsilon_h = \mu_h = 1$. La valeur de la permittivité de TiO_2 utilisée est la même que celle de la section III.2.3, c'est-à-dire :

$$\varepsilon_p^{'} = 3,33 \cdot \nu + 92,34 \tag{V.6}$$

$$\varepsilon_p^{''} = 0,28 \cdot \nu^2 + 7,64 \cdot \nu - 1,54 \tag{V.7}$$

Nous avons examiné, dans un premier temps, les conditions minimales pour obtenir une permittivité effective négative avec ce type de système. Nous avons ainsi tracé l'abaque de la FIGURE V.3 qui indique les domaines de fraction volumique et de rayons à utiliser pour atteindre une permittivité négative à une fréquence donnée. Nous remarquons, en examinant ce graphe, que la fraction volumique minimale pour

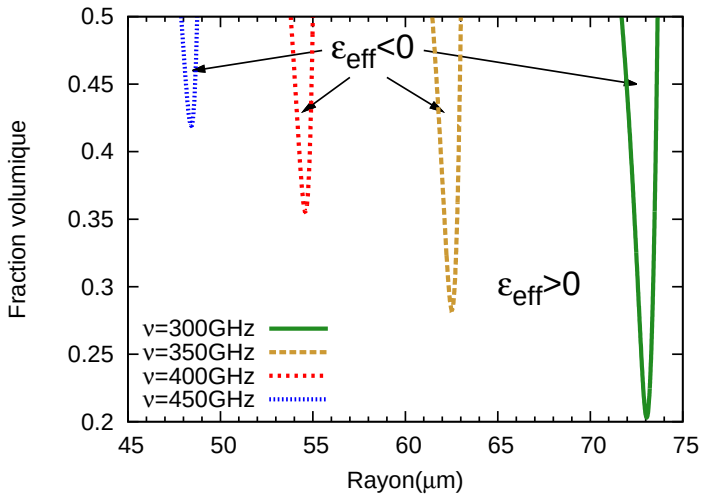

FIGURE V.3 – Abaque pour TiO_2 montrant la zone de permittivité négative (zone surlignée) en fonction de la fraction volumique et du rayon des particules.

obtenir un paramètre effectif négatif est très grande (supérieure à 20% dans le meilleur des cas alors que l'on peut obtenir une perméabilité négative avec des fractions volumiques inférieures à 5%, cf. FIGURE III.27). Nous présentons sur la FIGUREV.4 la permittivité effective obtenue pour un matériau composite de sphères de TiO_2 de 70 µm de rayon, concentrées à une fraction volumique de 30%. Comme pour les perméabilités du chapitre précédent, la permittivité calculée présente une allure caractéristique d'une résonance, avec pour la courbe réelle, une région de forte permittivité positive et une région de permittivité

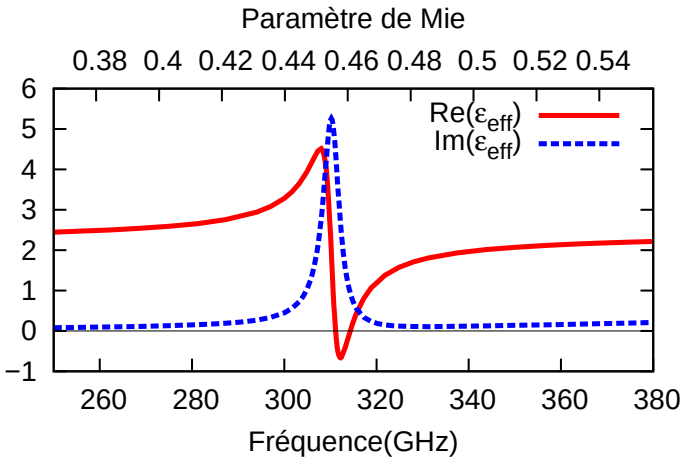

FIGURE V.4 – Permittivitté effective pour des sphères de TiO_2 de 70 µm de rayons concentrées à une fraction volumique de 30%.

négative. Cependant, avec cette fraction volumique, on remarque sur les FIGURES V.3 et V.4 que cette zone négative a une amplitude et une largeur très faible en comparaison des amplitudes et de largeurs de la perméabilité effective à la même fraction volumique (FIGURE III.35).

Ainsi, ces résultats montrent que l'on peut obtenir une permittivité négative à partir de sphères diélectriques dans la gamme térahertz. En utilisant la résonance magnétique décrite au chapitre III, on peut théoriquement, de la même manière que dans [120], avec des arrangements bi-disperses de sphères de rayons ajustés comme sur la FIGURE V.1, obtenir un milieu à indice effectif négatif.

V.2.2 Rapport des tailles des sphères et arrangement géométrique

Nous considérons maintenant, un milieu composite composés de deux populations de tailles de sphères de TiO_2 immergées dans un milieu hôte pour créer un milieu à indice effectif négatif. Nous nous interrogeons ici sur la manière d'arranger les deux types de résonateurs dans l'espace. Dans la théorie de Maxwell Garnett, aucune distinction n'est faite a priori sur la structure utilisée (qui peut être aussi bien ordonnée que désordonnée). Cependant des fractions volumiques élevées sont nécessaires pour l'obtention de l'indice négatif dans cette gamme de fréquence, et imposent donc un arrangement géométrique assez dense pour les atteindre. Un système ordonné est ainsi préférable (et facilitera aussi les simulations). Nous présentons ici l'étude des caractéristiques de la structure qui sera utilisée dans la suite.

V.2.2-a Rapport entre les tailles des deux types de sphères

Nous calculons ici le rapport des tailles des sphères pour que les résonance dipolaires électrique des grandes et magnétique des petites se produisent à la même fréquence.
Nous appelons r_{ma} le rayon des petites sphères donnant la résonance magnétique et r_{el} le rayon des grandes sphères donnant la résonance électrique. Avec ces notations, les conditions de résonances dipolaires de Mie (III.6) et (V.4) s'écrivent $\mathrm{Re}(\tau_{ma} \cdot m_{ma}) \approx \pi$, et $\mathrm{Re}(\tau_{el} \cdot m_{el}) \approx 4,44$.
On veut que ces deux résonances se produisent à la même fréquence, c'est-à-dire pour la même longueur

d'onde d'excitation λ_0 :

$$\frac{2\pi \mathrm{Re}(n_{\mathrm{p_{ma}}})r_{\mathrm{ma}}}{\lambda_0} \approx \pi, \qquad \frac{2\pi \mathrm{Re}(n_{\mathrm{p_{el}}})r_{\mathrm{el}}}{\lambda_0} \approx 4,44 \tag{V.8}$$

où $n_{\mathrm{p_{ma}}}$ et $n_{\mathrm{p_{el}}}$ sont les valeurs des indices des matériaux des petites et des grandes sphères, respectivement. Il s'ensuit :

$$\frac{\mathrm{Re}(n_{\mathrm{p_{el}}})}{\mathrm{Re}(n_{\mathrm{p_{ma}}})} \cdot \frac{r_{\mathrm{el}}}{r_{\mathrm{ma}}} = \frac{4,44}{\pi} \tag{V.9}$$

En particulier, si les matériaux formant les deux types de sphères sont identiques, on trouve :

$$r_{\mathrm{el}} = \frac{4,44}{\pi} r_{\mathrm{ma}} \approx 1,41 \cdot r_{\mathrm{ma}} \tag{V.10}$$

On constate, comme expliqué qualitativement plus tôt, que les sphères donnant la résonance électrique r_{el} doivent être les plus grosses.

V.2.2-b Arrangement géométrique des sphères

Si nous voulons effectuer des simulations sur de tels matériaux, il nous est maintenant nécessaire de construire la structure qui permette d'atteindre les fortes fractions volumiques requises. Comme nous l'avons montré précédemment, les sphères donnant la résonance électrique, r_{el}, sont les plus grosses et doivent être très concentrées pour atteindre des valeurs de permittivité effective négative. La concentration minimale en petites sphères r_{ma} pour obtenir une perméabilité effective négative est, d'après le chapitre III, beaucoup moins élevée.
Ainsi, il nous faut construire un arrangement cristallin avec une forte concentration en grandes sphères, et, qui permettent, dans les interstices du réseau, l'introduction des petites sphères de rayon donné par (V.10).
Nous avons utilisé, comme dans [120] un réseau de type cubique centré (maille CsCl), où les sphères de rayon r_{el} forment un réseau cubique. Au centre de chaque cube se situe une sphère de rayon r_{ma} comme nous le montrons sur la FIGURE V.5. (Nous avons également considéré d'autres structures cristallines

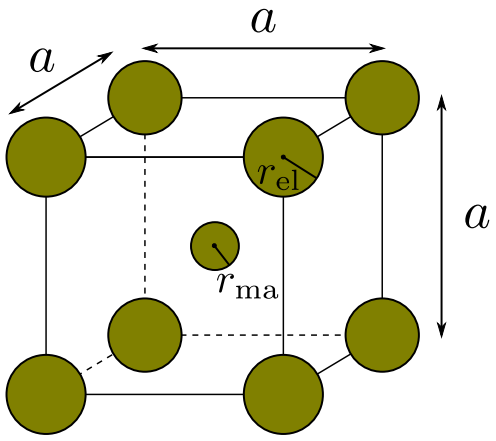

FIGURE V.5 – Cellule unitaire de la maille cubique centrée de la structure CsCl utilisée.

classiques, parmi lesquelles celle-ci s'est révélée optimale en terme de densité).

La compacité maximale du réseau formé par les sphères de rayon r_{el} est obtenue lorsque celle ci sont en contact suivant l'arête du cube. Dans ce cas, $a = 2r_{el}$, et la fraction volumique en grandes sphères f_{el} est égale à :

$$f_{el}^{max} = \frac{4\pi r_{el}^3}{3(2r_{el})^3} \approx 52,4\% \tag{V.11}$$

D'après la FIGURE V.3, cette fraction volumique est largement suffisante pour obtenir une permittivité effective négative.
Nous calculons maintenant $l_{restant}$, l'espace restant sur la diagonale du cube formée par les sphères de rayon r_{el} concentrée à f_{elmax}. La longueur de la diagonale du cube, est égale à $\sqrt{3}a$ et l'espace restant est donné par :

$$l_{restant} = \sqrt{3}a - 2r_{el} \tag{V.12}$$

Dans le cas où les grandes sphères sont en contact suivant l'arrête du cube, $a = 2r_{el}$, d'où :

$$l_{restant} = 2r_{el}(\sqrt{3} - 1) \tag{V.13}$$

En utilisant (V.10), on obtient :

$$l_{restant} = 2 \cdot (1,41 \cdot r_{ma})(\sqrt{3} - 1) > 2 \cdot r_{ma} \tag{V.14}$$

Nous voyons donc que quand les grandes sphères sont concentrées au maximum, l'espace restant sur la diagonale est supérieur au diamètre des petites particules, laissant effectivement la possibilité de construire le système même à haute fraction volumique en grandes particules.
Il nous reste maintenant à vérifier qu'avec un tel arrangement cristallin, la fraction volumique en petites sphères f_{ma} est suffisante pour obtenir une perméabilité effective négative. La fraction volumique f_{ma} en petites particules vaut :

$$f_{ma} = \frac{4\pi r_{ma}^3}{3a^3} \approx \frac{f_{el}}{1,41^3} \tag{V.15}$$

Ainsi lorsque l'arrangement atteint sa compacité maximale :

$$f_{ma}^{max} \approx \frac{0,524}{1,41^3} \approx 18,7\% \tag{V.16}$$

D'après le chapitre III, cette fraction volumique est largement suffisante pour obtenir une perméabilité effective négative.
Nous connaissons maintenant l'arrangement géométrique nécessaire, le rapport entre les rayons des sphères ainsi que le rapport des fractions volumiques adéquats pour construire notre métamatériau dans une simulation et le comparer aux résultats analytiques.

V.2.3 Structures étudiées

Sur l'ensemble des structures que nous avons étudiées numériquement ou analytiquement au cours de nos travaux sur les assemblages bidisperses de particules, nous présentons dans le TABLEAU V.1, les structures I à V que nous avons choisies de détailler dans ce chapitre en tant qu'exemples typiques des effets observés. Dans tous les cas, comme la permittivité varie relativement peu avec la fréquence et par souci de simplicité, nous avons considéré une permittivité constante. La structure I correspond à un arrangement dont les tailles ont été ajustées pour donner un indice négatif à 300 GHz, pour laquelle

la permittivité $\varepsilon_p = 93,336 + 0,7784i$ pour le TiO_2 a été choisie à cette fréquence (valeur identique à celle utilisé dans les chapitres précédents). Pour les structures de II à V, nous avons considéré différentes fractions volumiques avec une permittivité présentant des pertes bien plus élevées que pour la structure I : $\varepsilon_p = 94 + 2,35i$, valeurs correspondant à une fréquence autour de 500 GHz. Ces structures nous permettront de voir l'effet de la fraction volumique et des pertes.

Structure	ε_p	r_{el} (µm)	r_{ma} (µm)	a (µm)	f_{el} (%)	f_{ma} (%)
I	$93,336+0,7784i$	70	50	168,56	30	10,9
II	$94+2,35i$	52	37	108,0	46,8	16,86
III	$94+2,35i$	52	37	114,0	39,75	14,32
IV	$94+2,35i$	52	37	126,0	29,44	10,61
V	$94+2,35i$	52	37	146,4	18,76	6,76

TABLEAU V.1 – Caractéristiques des différentes structures considérées dans ce chapitre.

V.2.4 Prédictions analytiques sur les assemblages bidisperses de sphères

Dans cette section, nous utilisons la formule de Maxwell Garnett étendue pour calculer la permittivité et perméabilité effective des aseemblages bidisperses de sphères. Nous rappelons ici le modèle utilisé dans [46] qui est basé sur la formule de Clausius-Mossotti généralisée et peut s'écrire sous cette forme :

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon_h \frac{1 + \dfrac{3if_{el}a_1(r_{el})}{\tau_{el}^3} + \dfrac{3if_{ma}a_1(r_{ma})}{\tau_{ma}^3}}{1 - \dfrac{3if_{el}a_1(r_{el})}{2\tau_{el}^3} - \dfrac{3if_{ma}a_1(r_{ma})}{2\tau_{ma}^3}}, \qquad \mu_{eff} = \mu_h \frac{1 + \dfrac{3if_{ma}b_1(r_{ma})}{\tau_{ma}^3}}{1 - \dfrac{3if_{ma}b_1(r_{ma})}{2\tau_{ma}^3}} \tag{V.17}$$

Cette formule a pour particularité de prendre en compte la contribution électrique des petites sphères de rayons r_{ma} dans le calcul de la permittivité effective (terme $\dfrac{3if_{ma}a_1(r_{ma})}{\tau_{ma}^3}$). Ce choix est justifié par la valeur de permittivité différente de l'unité pour ces sphères.
Dans notre calcul, nous avons choisi d'inclure aussi la contribution magnétique des grandes sphères de rayons r_{el} dans le calcul de la perméabilité effective, qui n'est en réalité pas négligeable même si elle est non-résonante. Les relations utilisées sont ainsi :

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon_h \frac{1 + \dfrac{3if_{el}a_1(r_{el})}{\tau_{el}^3} + \dfrac{3if_{ma}a_1(r_{ma})}{\tau_{ma}^3}}{1 - \dfrac{3if_{el}a_1(r_{el})}{2\tau_{el}^3} - \dfrac{3if_{ma}a_1(r_{ma})}{2\tau_{ma}^3}}, \qquad \mu_{eff} = \mu_h \frac{1 + \dfrac{3if_{el}b_1(r_{el})}{\tau_{el}^3} + \dfrac{3if_{ma}b_1(r_{ma})}{\tau_{ma}^3}}{1 - \dfrac{3if_{el}b_1(r_{el})}{2\tau_{el}^3} - \dfrac{3if_{ma}b_1(r_{ma})}{2\tau_{ma}^3}} \tag{V.18}$$

Nous déduisons ensuite, grâce aux formules (I.14) et (I.18), l'indice ainsi que l'impédance effective.

Les paramètres effectifs pour la structure I à V sont représentés sur les FIGURES V.6 à V.10. Pour les structure I à IV, nous observons qu'une partie réelle négative de l'indice effectif est prédite pour des fréquences autour de 310 GHz pour la structure I, et autour de 420 GHz pour les structures II à IV. Ce comportement est la conséquence d'une perméabilité et permittivité effective négatives simultanément à ces fréquences, comme prévu par les calculs effectué précédemment. La structure V quand à elle, du fait de sa fraction volumique plus faible ne présente pas de bande d'indice négatif.

Il est à noter que les fractions volumiques totales permettant d'obtenir l'effet d'indice négatif sont très élevées, bien au-delà du régime de validité de la théorie de Maxwell Garnett, entraînant notamment des couplages entre particules (dipolaires et multipolaires) absents de la théorie. Il est ainsi difficile d'accorder un statut plus que qualitatif à ces prédictions, et nous nous tournons vers les simulations numériques par éléments finis pour analyser ces structures avec plus de fiabilité.

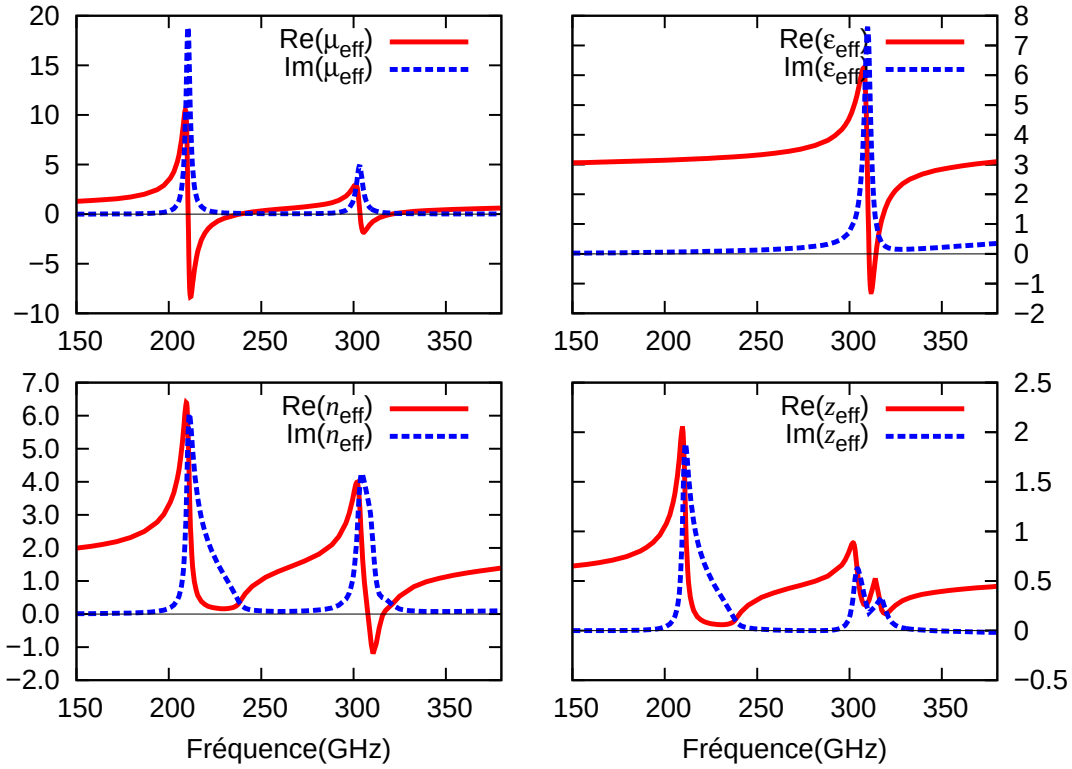

FIGURE V.6 – Paramètres effectifs issus de la théorie de Maxwell Garnett, pour la structure I.

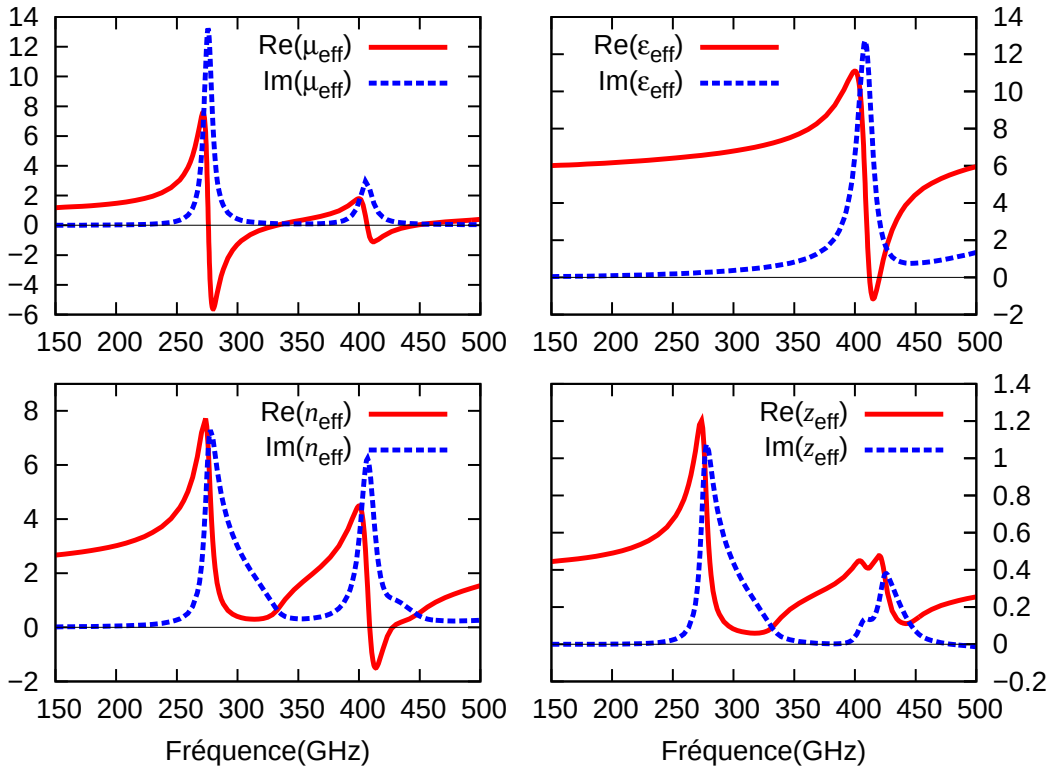

FIGURE V.7 – Paramètres effectifs issus de la théorie de Maxwell Garnett, pour la structure II.

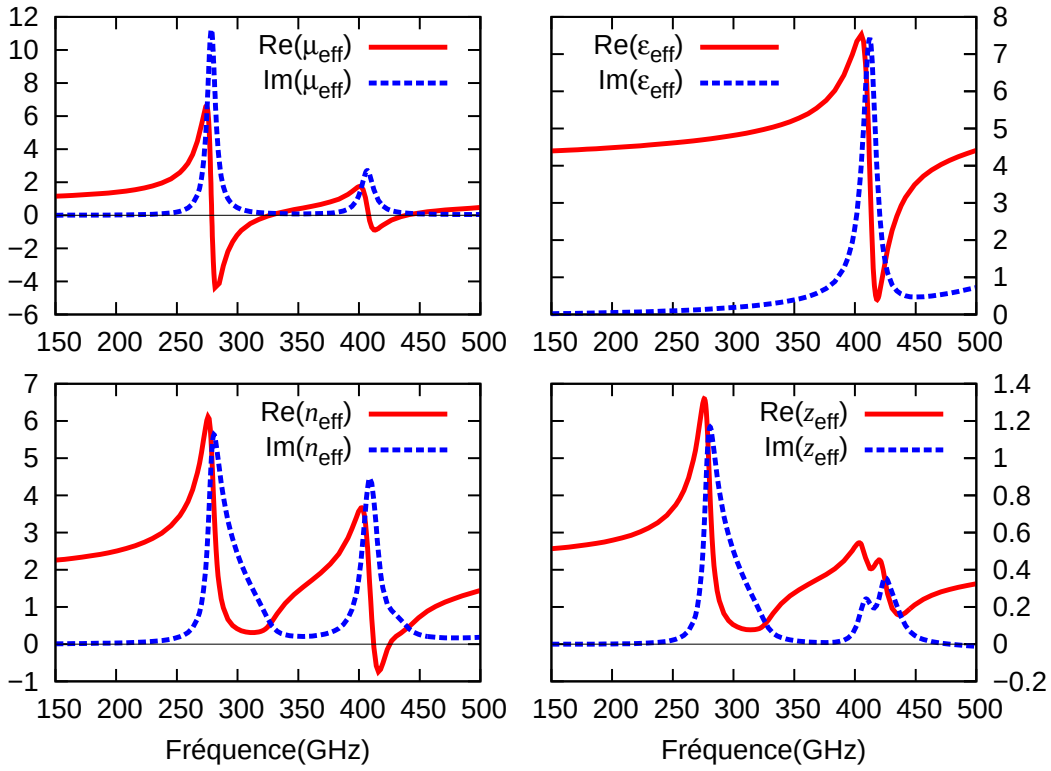

FIGURE V.8 – Paramètres effectifs issus de la théorie de Maxwell Garnett, pour la structure III.

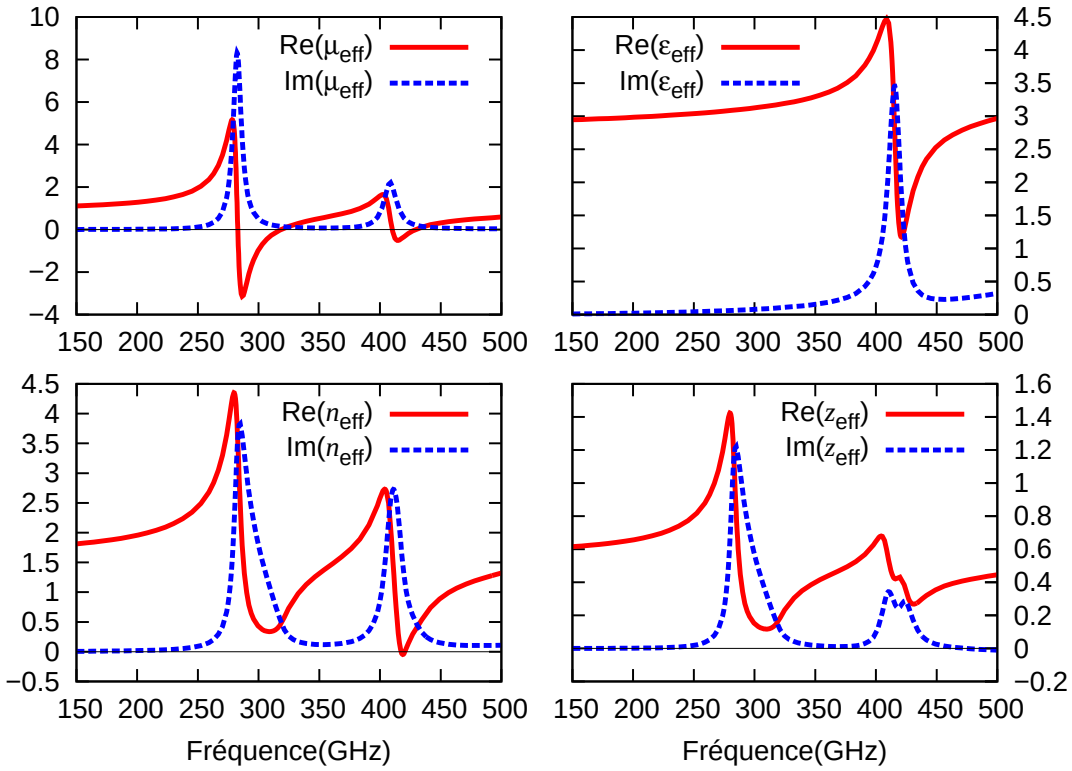

FIGURE V.9 – Paramètres effectifs issus de la théorie de Maxwell Garnett, pour la structure IV.

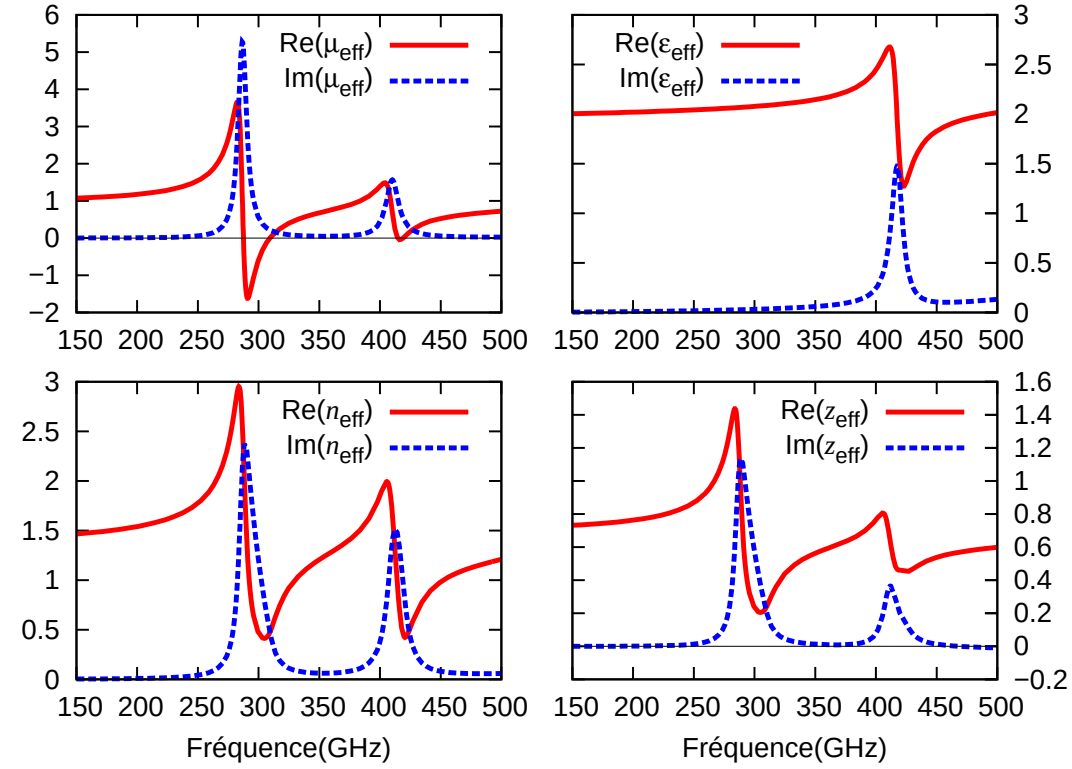

FIGURE V.10 – Paramètres effectifs issus de la théorie de Maxwell Garnett, pour la structure V.

V.3 Simulations numériques et extraction des paramètres effectifs

V.3.1 Structure simulée

Nous présentons maintenant les résultats des simulations par éléments finis des structures de type CsCl de sphères bidisperses de TiO_2 décrites dans la section V.2.2-b. Notre but est de vérifier l'existence d'une bande de fréquence à indice négatif prévue par le calcul de la théorie de Maxwell Garnett. Contrairement aux matériaux du chapitre III qui se comportent comme des miroirs à la résonance car seule la perméabilité est négative, ici, dans le cas d'un milieu à indice négatif, la propagation des ondes à l'intérieur du matériau est permise. Afin de minimiser les effets de réflexions sur la face arrière de la structure, nous avons décidé d'augmenter le nombre de cellule unitaire le long de la direction de propagation par rapport au chapitre III, et comme on peut le voir sur la FIGURE V.11 nous avons utilisé 10 cellules unitaires le long de cette direction. Comme auparavant, les conditions aux limites *perfect E*

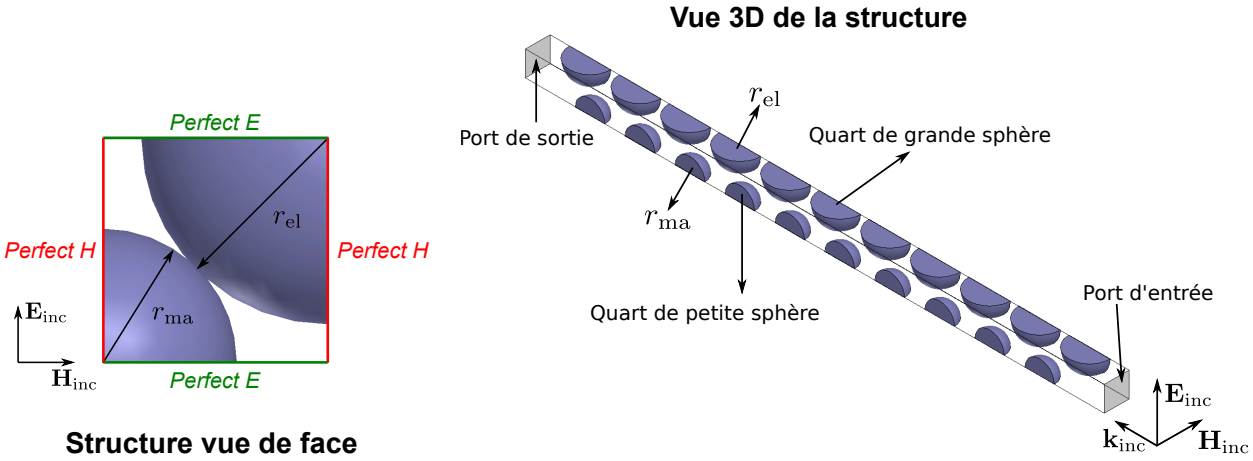

FIGURE V.11 – Structure de type CsCl utilisée pour les simulations et constitués de sphères de TiO_2 de rayons r_{el} et r_{ma} dans le vide illuminées par une onde plane de vecteur d'onde $\mathbf{k}_{inc}$.

(conducteur électrique parfait) et *perfect H* (conducteur magnétique parfait) permettent de périodiser la structure et ainsi de simuler un milieu infini selon les deux directions perpendiculaires à la direction de propagation.

V.3.2 Analyse et interprétation du spectre de transmission

Nous examinons, dans un premier temps, les spectres de transmission des structures I à V, comme cela est fait dans [120] pour tenter d'identifier les résonances. Cette approche à l'avantage d'éviter les imprécisions éventuelles des procédures d'extraction des paramètres effectifs. Afin de pouvoir interpréter les spectres de transmission, nous rappelons un résultat du premier chapitre :

- Un matériau possédant dans la même gamme de fréquence $\varepsilon_{eff} < 0$ et $\mu_{eff} > 0$ se comporte comme un miroir électrique : la propagation des ondes dans le matériau est interdite, ce qui se traduit par une bande interdite dans le spectre de transmission.
- De même, un matériau possédant dans la même gamme de fréquence $\mu_{eff} < 0$ et $\varepsilon_{eff} > 0$ se comporte comme un miroir magnétique, ce qui se traduit, là aussi, par une bande interdite dans le spectre de transmission.

– Par contre, lorsque les deux paramètres effectifs μ_{eff} et ε_{eff} sont positifs ou négatifs dans la même gamme de fréquence, les ondes peuvent se propager dans le matériau, ce qui se traduit par une bande passante dans le spectre de transmission.
On définit la transmission par $T = \left| \frac{E_{\text{sortant}}}{E_{\text{incident}}} \right|$ et les spectres de transmission des structures I à V sont représentés sur les FIGURES V.12 à V.16.

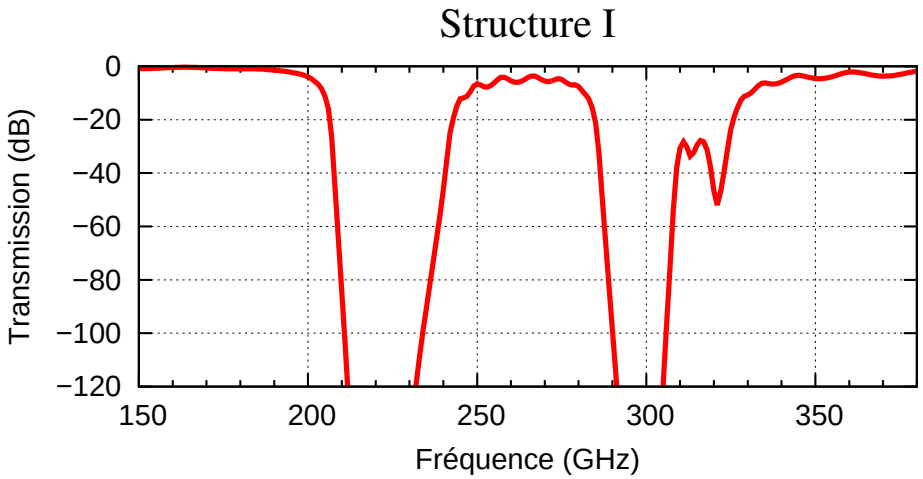

FIGURE V.12 – Transmission issue de la simulation de la structure I.

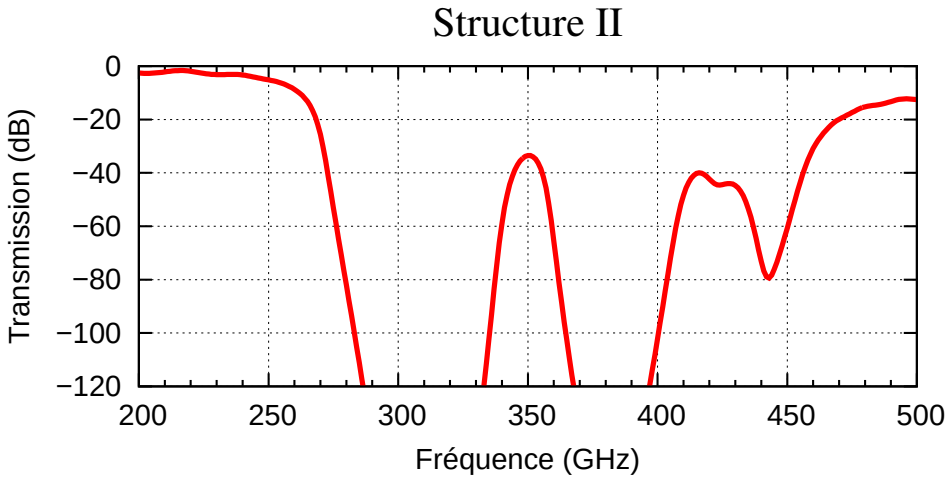

FIGURE V.13 – Transmission issue de la simulation de la structure II.

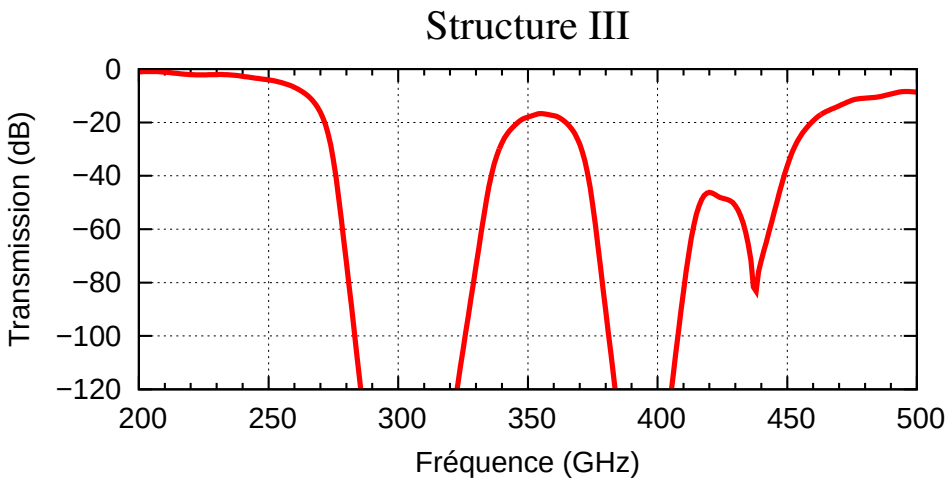

FIGURE V.14 – Transmission issue de la simulation de la structure III.

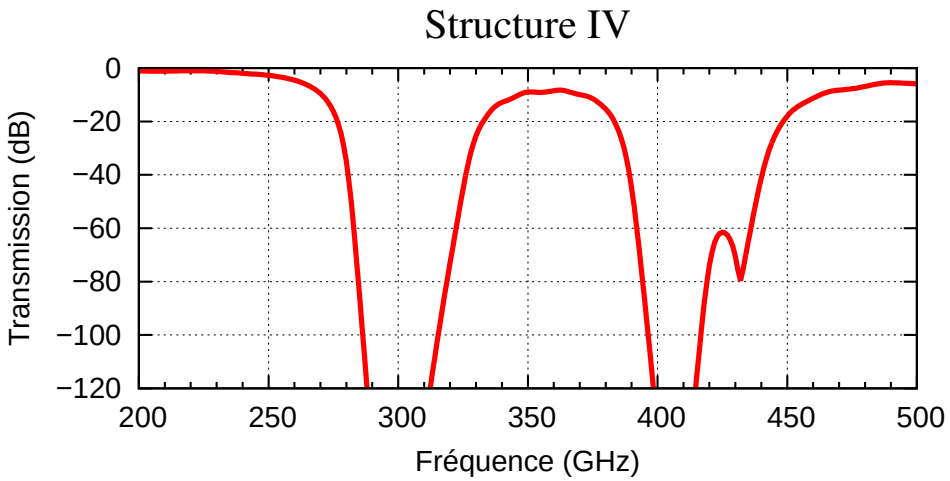

FIGURE V.15 – Transmission issue de la simulation de la structure IV.

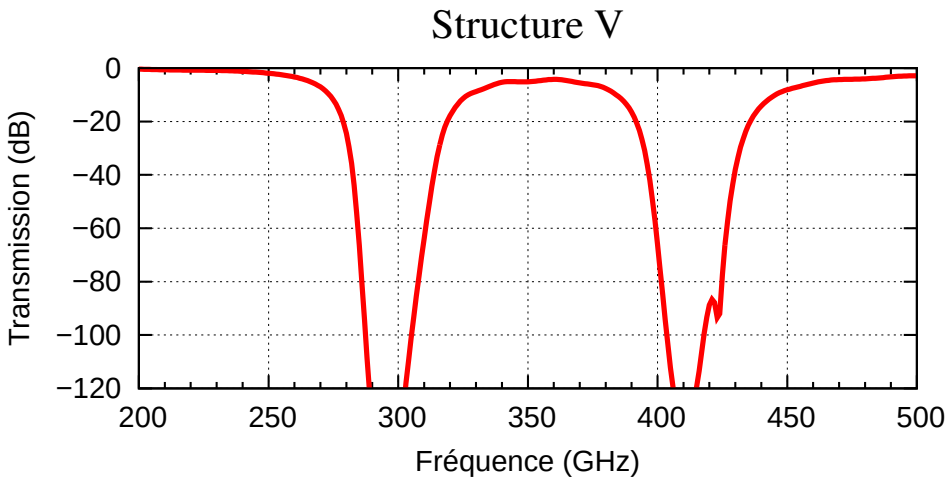

FIGURE V.16 – Transmission issue de la simulation de la structure V.

Tout ces spectres ont la même forme générale et présentent deux bandes interdites majeures. De plus, la bande interdite à plus haute fréquence se divise en deux sous-bandes dont la séparation est plus marquée à forte fraction volumique. Nous analysons dans la prochaine section ce comportement en prenant l'exemple particulier de la structure I.

V.3.2-a Analyse de la contribution des grandes sphères seules

Afin de comprendre ce qui se passe quand on introduit les résonateurs, nous analysons dans un premier temps le spectre de transmission de la structure I lorsque l'on simule l'arrangement précédent avec les sphères de rayon r_{ma} ou r_{el} seules. Nous avons représenté sur la FIGURE V.17 le spectre de transmission de la structure I lorsque l'on a les grandes sphères de rayon r_{el} seules.

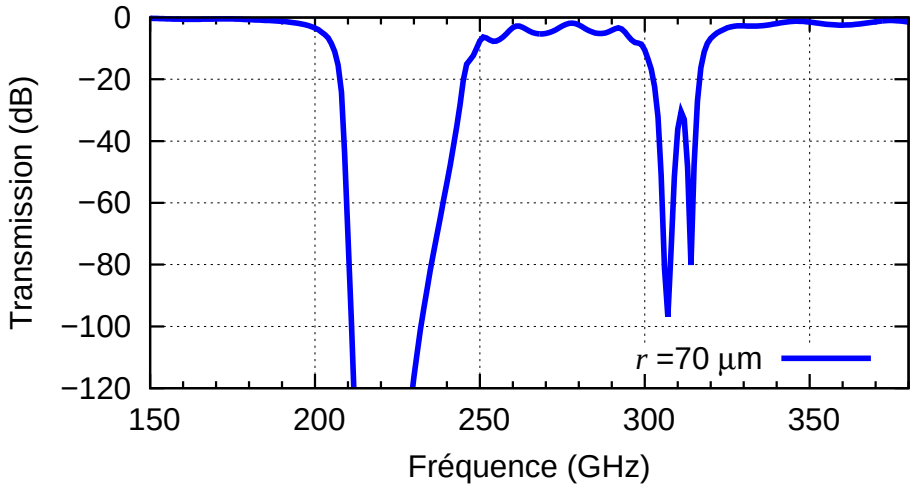

FIGURE V.17 – Transmission issue de la simulation pour la structure I avec les grandes sphères seules.

Nous commençons par analyser le spectre des grandes sphères de rayon r_{el}, représenté sur la FIGURE V.17, obtenu pour un arrangement cubique simple à une fraction volumique de 30%.
On observe deux bandes interdites dans ce spectre de transmission, la première centrée sur 220 GHz et la seconde centrée sur 310 GHz. La première de ces bandes, à plus basse fréquence, s'explique simplement par la présence de la résonance dipolaire magnétique de Mie, comme nous pouvons le vérifier en comparant avec le calcul de la théorie de Maxwell Garnett de la FIGURE V.6.

On peut en revanche remarquer que la bande interdite centrée sur 310 GHz comporte deux sous-bandes. Il est facile de vérifier que ces sous-bandes correspondent à peu près aux résonances dipolaire électrique et quadrupolaire magnétique, dont on voit en observant la FIGURE III.25, qu'elles ont lieu exactement à la même fréquence. Le dédoublement de la bande en deux sous-bandes distinctes pourrait provenir de la séparation fréquentielle de ces deux résonances à forte fraction volumique, induite par exemple par des effets de couplage. Pour confirmer cette interprétation, nous avons représenté sur la FIGURE V.18 le champ vectoriel $\mathbf{E}$ à 307 GHz et 314 GHz, les fréquences correspondantes aux deux pics, sur le plan $(\mathbf{E}_{\mathrm{inc}}, \mathbf{H}_{\mathrm{inc}})$ formés par les champs incidents et passant par le centre des sphères de la première couche. La taille de la structure simulée a été agrandi par soucis de clarté.
On remarque qu'à la fréquence de 307 GHz le champ électrique est orienté dans la même direction partout dans les sphères alors qu'à la fréquence de 314 GHz le champ électrique aux centres des sphère est opposé au champ électrique présent sur les bords extérieurs des sphères. En comparant la forme du champ de

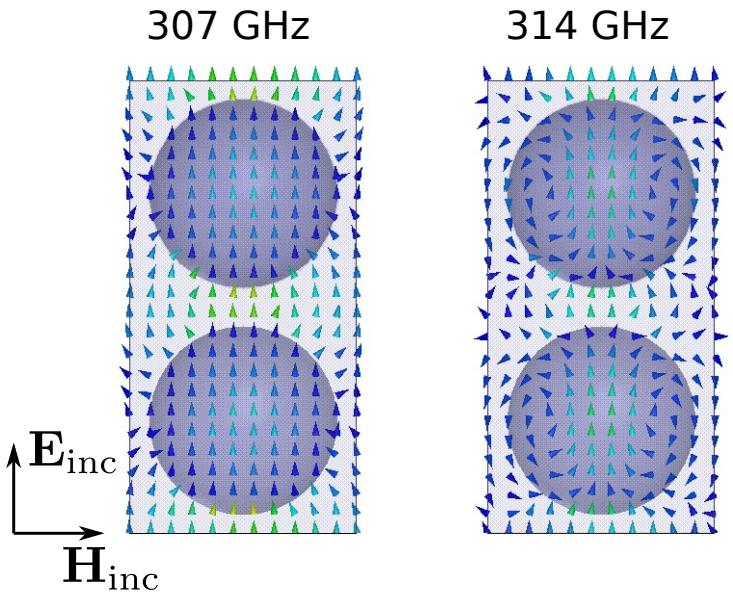

FIGURE V.18 – Champ vectoriel $\mathbf{E}$ à 307 GHz et 314 GHz représenté dans le plan $(\mathbf{E}_{\text{inc}}, \mathbf{H}_{\text{inc}})$ passant par le centre des grandes sphères de la première couche du matériau.

la figure aux diagrammes de champs électrique de la page 98 de [64], on en déduit qu'à 307 GHz , le vecteur $\mathbf{E}$ est proportionnel à $\mathbf{N}_{e11}$ et qu'à 314 GHz, il est proportionnel à $\mathbf{M}_{o12}$. Or, d'après la théorie de Mie, le champ électrique à l'intérieur de la sphère (II.14) s'écrit, en ne gardant que les termes dipolaire $(n = 1)$ et quadrupolaire $(n = 2)$:

$$\mathbf{E}_{\text{p}} = E_1 \left(c_1 \mathbf{M}_{o11}^{(1)} - i d_1 \mathbf{N}_{e11}^{(1)} \right) + E_2 \left(c_2 \mathbf{M}_{o12}^{(1)} - i d_2 \mathbf{N}_{e12}^{(1)} \right) \tag{V.19}$$

On en déduit que le champ vectoriel est dominé par le terme d_1 à 307 GHz et par le terme c_2 à 314 GHz, ce qui confirme que nous avons bien affaire à une résonance dipolaire électrique à 307 GHz et une résonance quadrupolaire magnétique à 314 GHz.

V.3.2-b Analyse de la contribution des petites sphères seules

Nous analysons maintenant la contribution des petites sphères de rayons r_{ma}, dispersées à une fraction de 10,9% dont le spectre est représenté sur la FIGURE V.19. Nous observons une bande interdite dans le spectre de transmission centrée sur 310 GHz, qui s'interprète simplement par la résonance dipolaire de Mie magnétique associée aux petites sphères.

V.3.2-c Analyse du spectre complet

A l'aide des considérations précédentes sur les spectres associés aux sous-structures constituées d'un seul type de sphère, nous sommes maintenant en mesure d'analyser le spectre de transmission de la structure I et représenté sur la FIGURE V.20. Nous remarquons sur cette FIGURE que la bande interdite à basse fréquence est la même que dans le cas des sphères de rayon r_{el} prises seules ; ces dernières dominent donc entièrement le comportement électromagnétique de la structure dans cette partie du spectre. On observe ensuite une large bande passante due à l'absence de résonances dans les sphères, puis enfin, là où les deux bandes interdites des contributions isolées concordent, on observe une large bande interdite et une

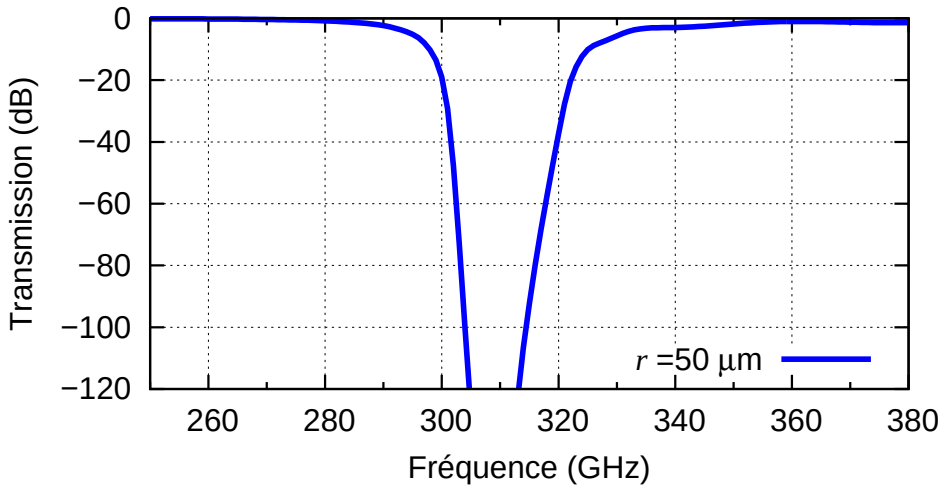

FIGURE V.19 – Transmission issue de la simulation pour les petites sphères seules.

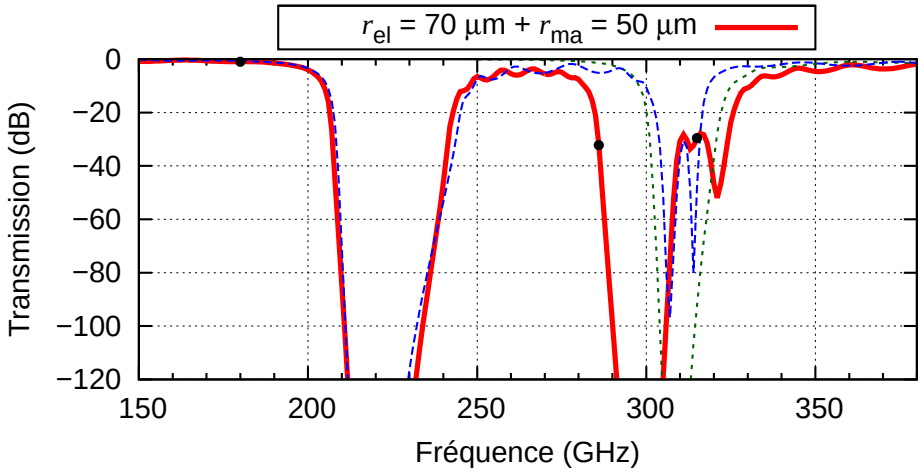

FIGURE V.20 – Spectre de transmission lorsque l'on simule les sphères de rayons r_{ma} et r_{el} suivant le schéma de la FIGURE V.11. Afin de pouvoir comparer avec les contributions nous avons représenté en trait fin les courbes des FIGURES V.17 et V.19.

autre moins prononcée définissant une bande passante (relative) entre elles. Cette bande passante est à l'endroit même où l'on s'attend a un indice négatif.

V.3.3 Extraction des paramètres effectifs et comparaisons aux prédictions analytiques

Nous utilisons maintenant l'extraction NRW pour extraire les paramètres effectifs de l'ensemble des structures et les comparons aux résultats de la théorie de Maxwell Garnett.
Dans le cas des structures bi-disperses représentées sur la FIGURE V.11, nous n'avons pas d'autre choix que d'utiliser la méthode NRW, car le calcul de la méthode de Scher est valable seulement pour un réseau composé d'un seul type de particule.
Le résultat de l'extraction NRW à partir des paramètres S de la simulation pour la structure I est présenté sur la FIGURE V.21.

Sur cette FIGURE, on observe une forte résonance magnétique dans μ_{eff} autour de 220 GHz et une forte résonance électrique dans ε_{eff} vers 300 GHz. Ces résonances correspondent aux bandes interdites observées dans le spectre de la partie précédente. En comparant les parties réelles des paramètres effectifs issus de la théorie de Maxwell Garnett et de la simulation représenté sur la FIGURE V.22, on remarque que la résonance magnétique dans μ_{eff} aux alentours de 300 GHz a disparu ce qui a pour conséquence que l'indice reste positif à ces fréquences.
Ces remarques restent valables pour les structures II à V dont les comparaisons avec la théorie de Maxwell Garnett sont représentées sur les FIGURE V.23 à V.26 .

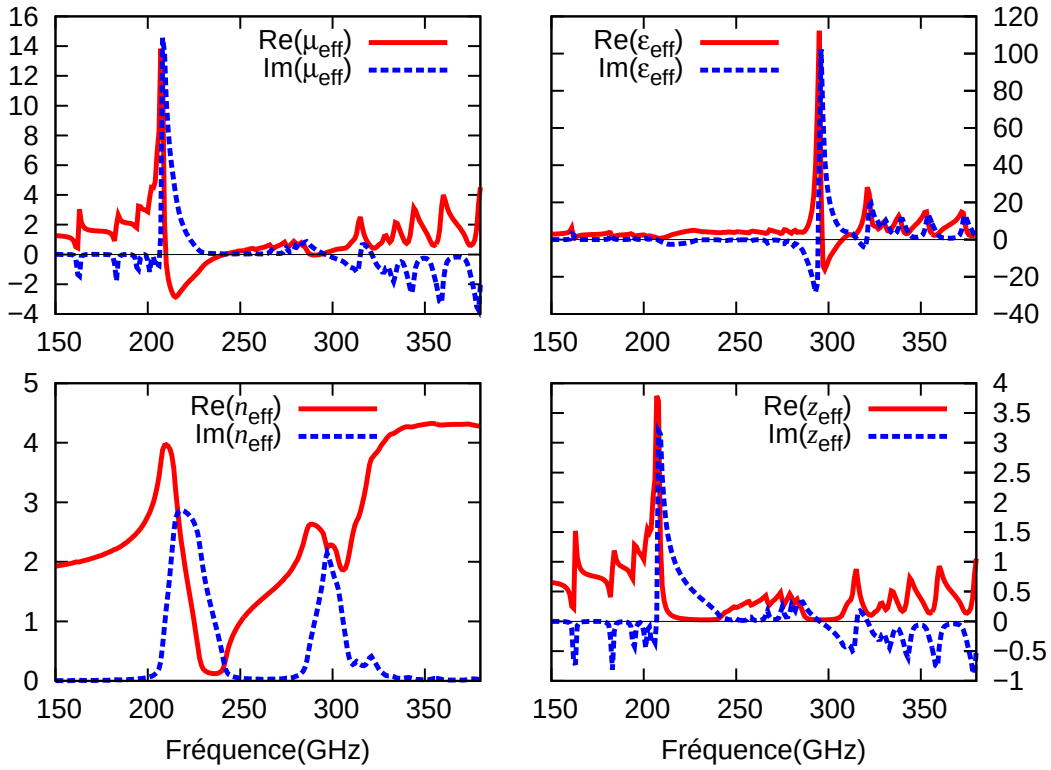

FIGURE V.21 – Paramètres effectifs extraits de la simulation numérique pour la structure I.

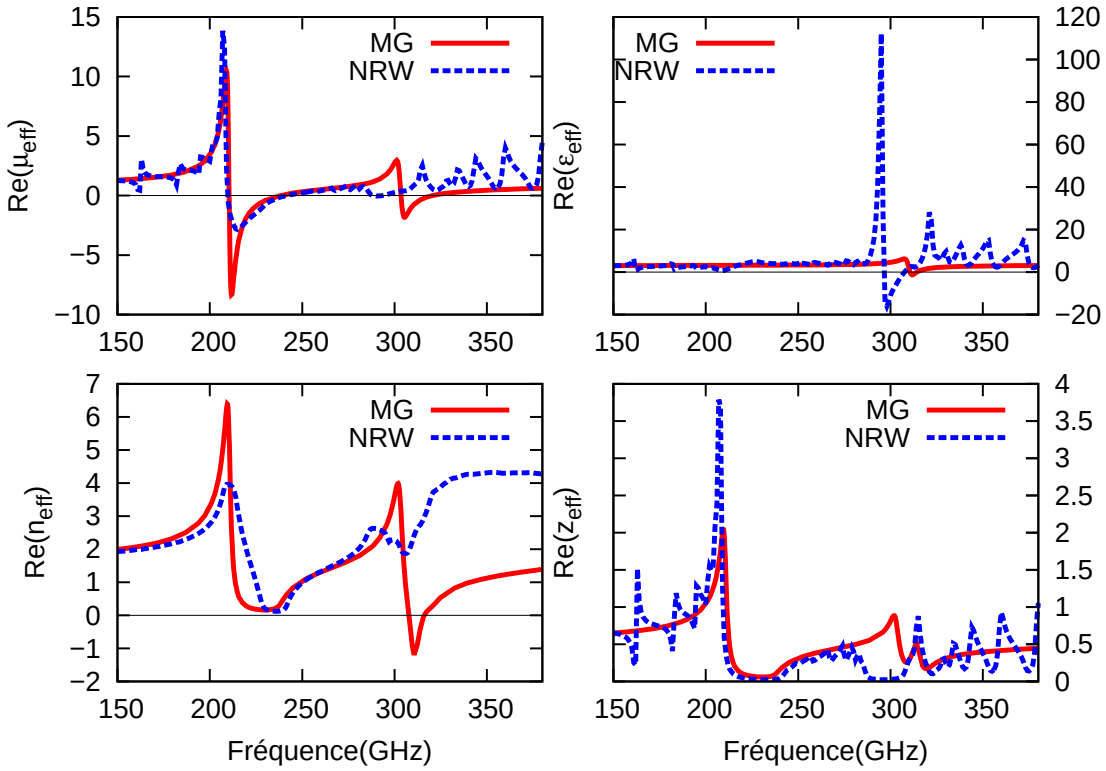

FIGURE V.22 – Comparaison entre la partie réelle des paramètres effectifs analytiques et numériques pour la structure I.

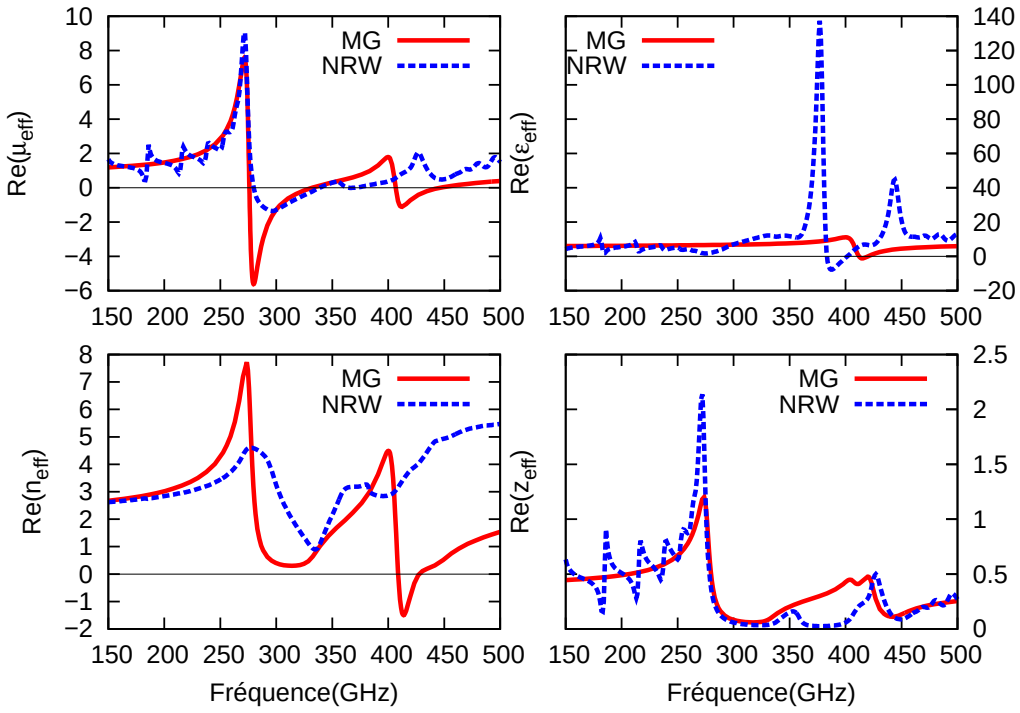

FIGURE V.23 – Comparaison entre la partie réelle des paramètres effectifs analytiques et numériques pour la structure II.

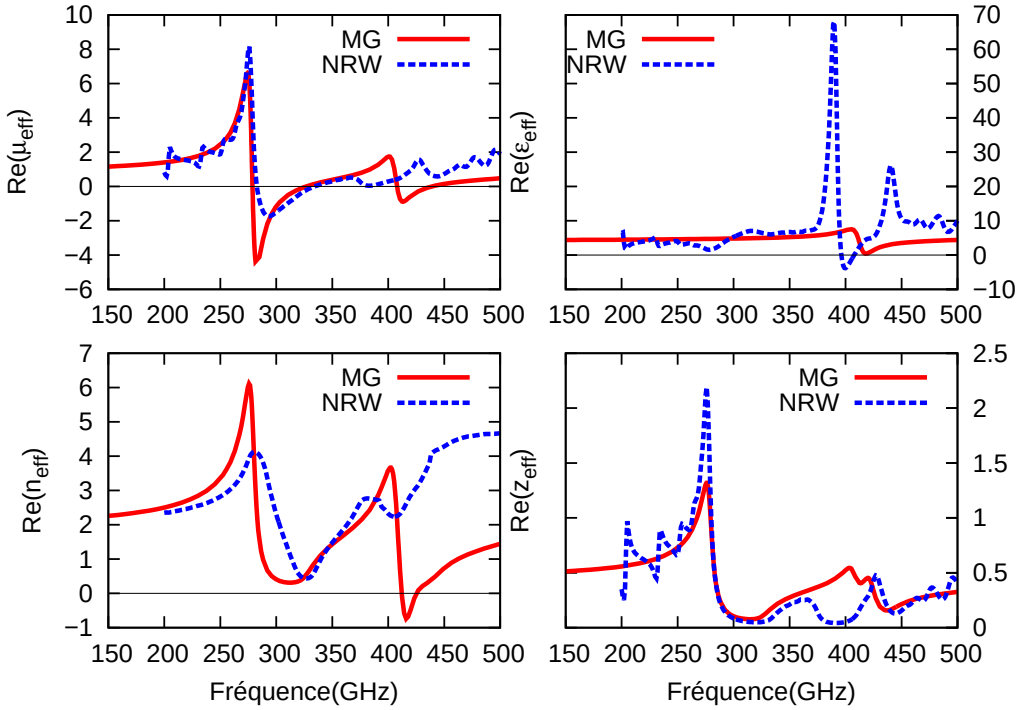

FIGURE V.24 – Comparaison entre la partie réelle des paramètres effectifs analytiques et numériques pour la structure III.

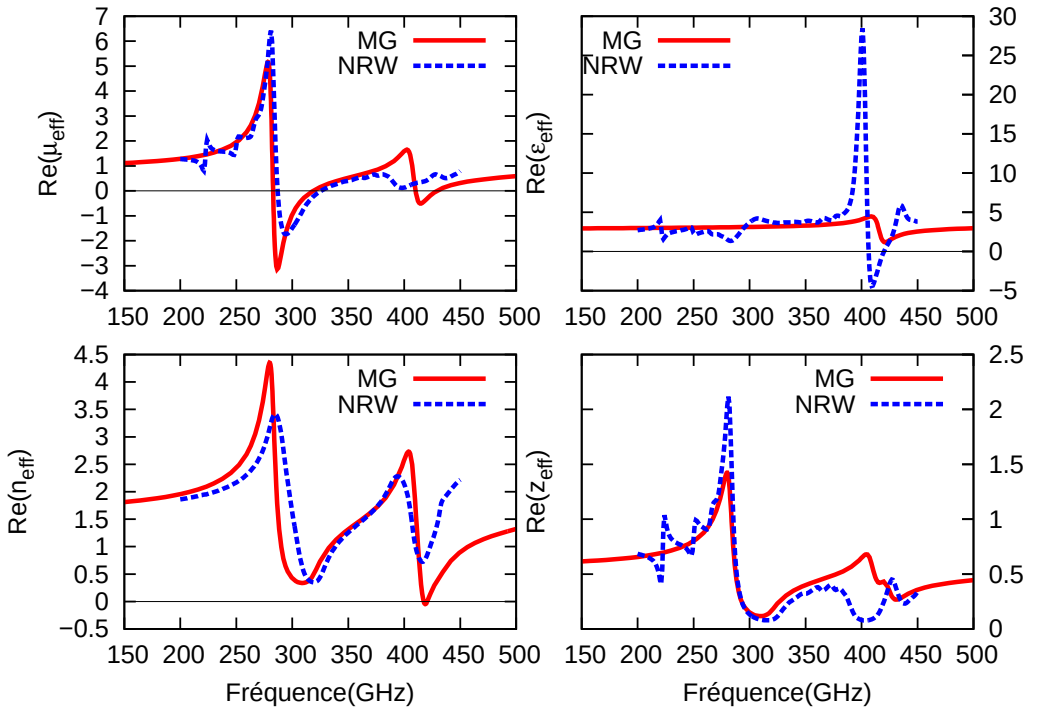

FIGURE V.25 – Comparaison entre la partie réelle des paramètres effectifs analytiques et numériques pour la structure IV.

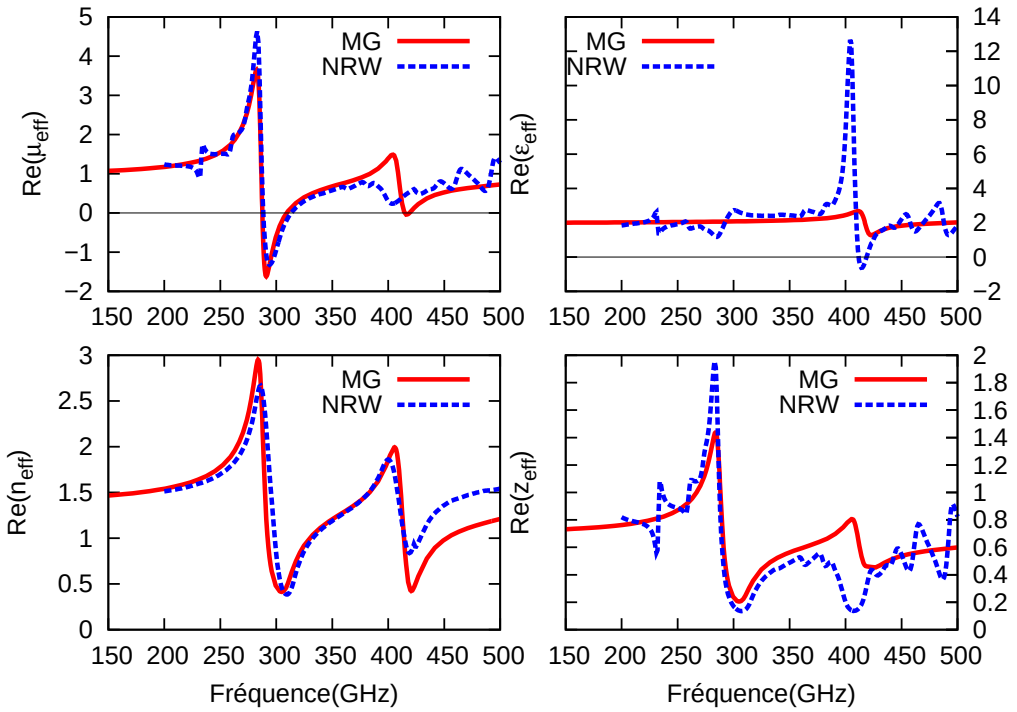

FIGURE V.26 – Comparaison entre la partie réelle des paramètres effectifs analytiques et numériques pour la structure V.

Sur ces FIGURES, on remarque que pour les parties basses fréquences, les résultats des éléments finis et ceux de Maxwell Garnett concordent bien. Pour des fréquences supérieures, les paramètres effectifs ne concordent plus et surtout, pour les structures I à IV la bande de la partie réelle de l'indice effectif n'apparaît pas à la suite de l'extraction que nous faisons des résultats FEM. Pour les structures dont la fraction volumique est plus faible (IV et V), l'accord entre indices est meilleur mais le fort désaccord en impédance subsiste.
La qualité de l'accord à basse fréquence avec les prédictions de Maxwell Garnett est relativement surprenant, étant donné les très fortes fractions volumiques mises en jeu. Cependant, nous avions déjà vu dans le chapitre III que l'accord en ce qui concerne le magnétisme est relativement bon même à fortes fractions volumiques. Le désaccord au niveau de l'indice négatif peut s'expliquer par :

- La condition de milieu effectif cesse d'être valide quand la longueur d'onde diminue ($d \approx \frac{\lambda}{6.86}$ à 310 GHz), ce qui est appuyé par le fait que les résultats concordent à basse fréquence (i.e. pour de grandes longueurs d'onde). Dans ce cas, la notion de permittivité et perméabilité perd son sens [91].
- Des effets multipolaires non négligeables (quadrupôle magnétique notamment).
- Un couplage entre particules qui devient lui aussi non négligeable.

Ainsi la bande d'indice négatif prévu par la théorie de Maxwell Garnett n'est pas présente dans les résultats des paramètres effectifs. Pour en avoir le coeur net, nous reprenons dans la suite l'idée de Vendik et al. dans [120], et utilisons les champs électromagnétiques à l'intérieur de la structure pour avoir une idée plus intuitive des phénomènes physiques ayant lieu en son sein.

V.3.3-a Inspection qualitative du champ

Pour essayer en première approximation de mieux comprendre ce qui se passe à l'intérieur de ces structures bi-disperse, nous avons, pour la structure I, visualisé la propagation de l'amplitude du champ magnétique $\mathbf{H}_{\text{ligne}}$ sur une droite passant par le centre des petites sphères (représenté sur la FIGURE V.27) sous formes d'animations. Nous reportons ici les images issus de ces animations à différents instants de la propagation, et cela pour trois différentes fréquences matérialisées par les points sur le spectre de transmission de la FIGURE V.20.

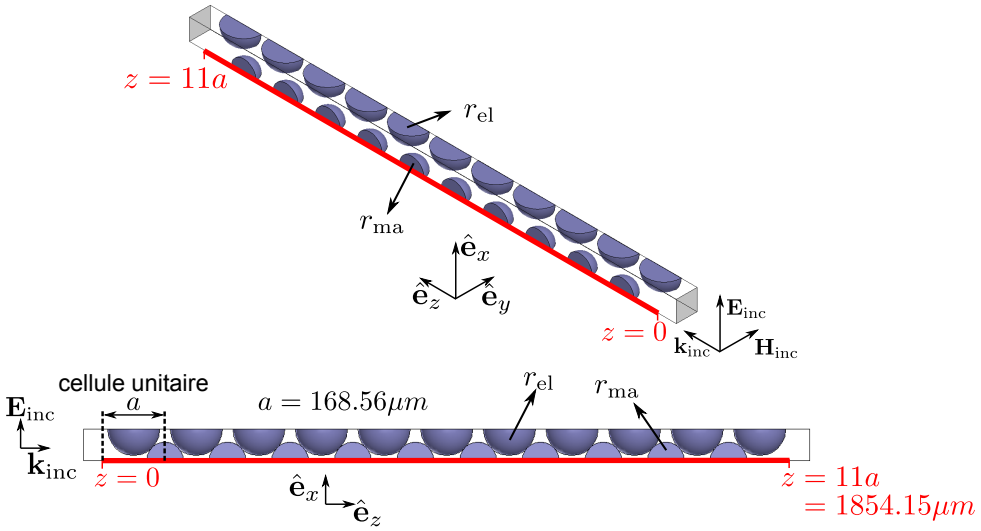

FIGURE V.27 – Ligne de la structure sur laquelle nous extrayons le champ magnétique. Les dimensions sont celles de la structure I.

Propagation à basse fréquence Nous avons jugé utile de montrer à titre de référence, $|\text{Re}(\mathbf{H}_{\text{ligne}})|$ sur la droite de la FIGURE V.27 loin de toute résonance, à basse fréquence. Ce champ magnétique pour une fréquence de 180 GHz est représenté sur la FIGURE V.28 pour différents instants de propagation. L'onde plane incidente se propage selon la direction des z positifs.
A cette fréquence, la transmission est quasiment égale à 1 (c.f. FIGURE V.20), et on a l'impression assez nette que l'onde se propage de gauche à droite à l'intérieur de la structure (vitesse de phase positive).

Propagation dans la bande passante attendue Nous montrons maintenant sur la FIGURE V.29 l'amplitude du champ magnétique dans la bande passante relative à une fréquence de 315 GHz (c.f. FIGURE V.20).

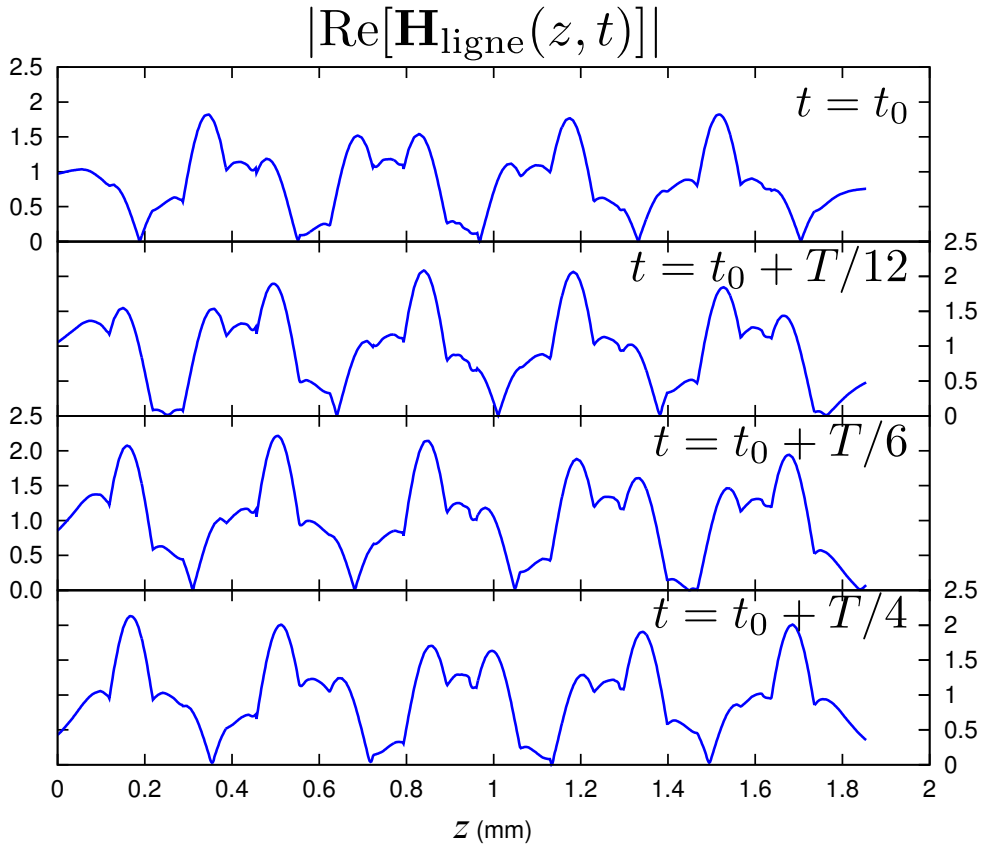

FIGURE V.28 – Module de la partie réelle du champ magnétique $\mathbf{H}_{\mathrm{ligne}}$ à une fréquence de 180 GHz pour différents instants de la propagation. On voit clairement la propagation de l'onde dans le sens positif.

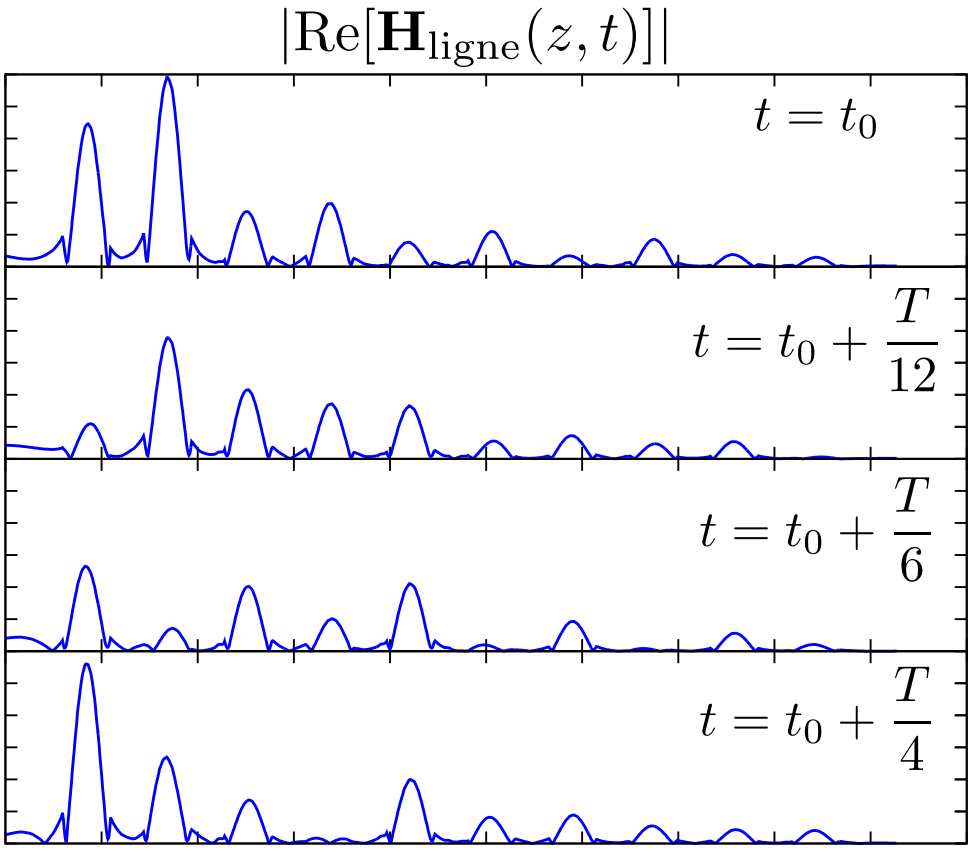

FIGURE V.29 – Module de la partie réelle du champ magnétique $\mathbf{H}_{\mathrm{ligne}}$ à une fréquence de 315 GHz pour différents instants de la propagation.

À partir de la visualisation du champ, il est très difficile de comprendre ce qu'il se passe à l'intérieur de la structure. En effet, on ne peut pas clairement suivre un motif périodique se propageant dans la structure.

Propagation dans la seconde bande passante La dernière fréquence à laquelle nous nous intéressons est de 286 GHz et correspond au début de la seconde bande interdite du spectre de transmission (FIGURE V.20). Le champ correspondant est représenté sur la FIGURE V.30. Sur la figure, on observe assez

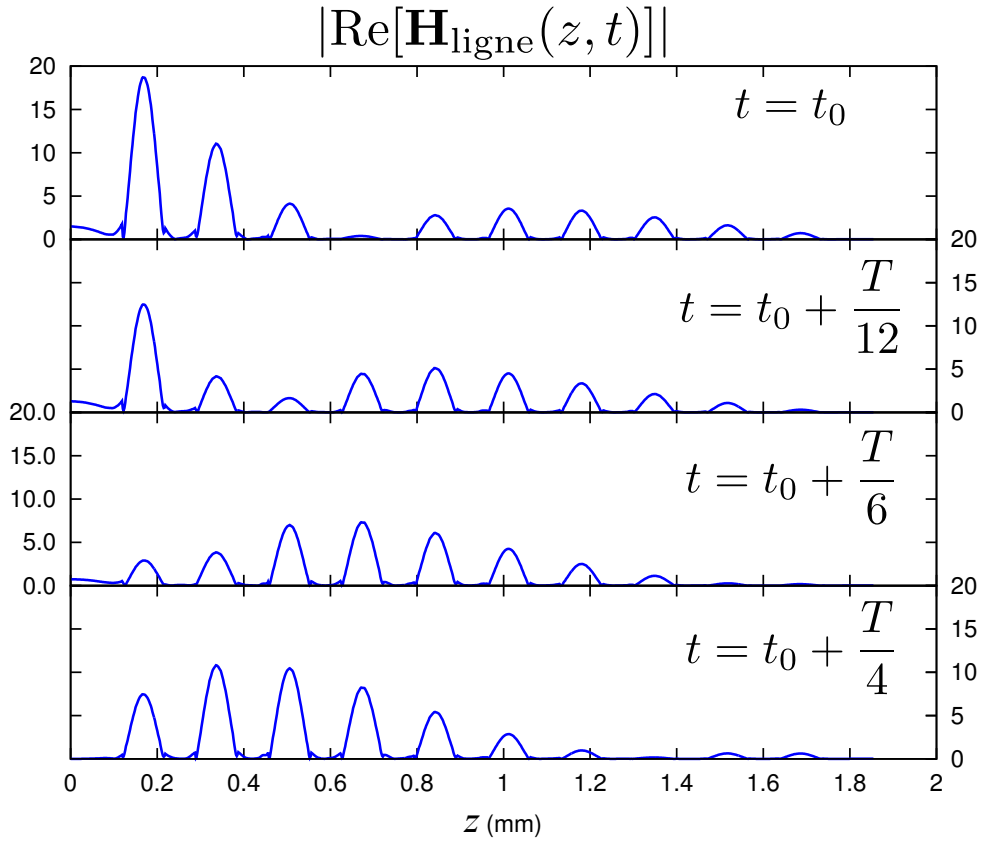

FIGURE V.30 – Module de la partie réelle du champ magnétique $\mathbf{H}_{\mathrm{ligne}}$ à une fréquence de 286 GHz pour différents instants de la propagation. On voit clairement la propagation de l'onde dans le sens négatif.

clairement les longueurs d'onde au sein de la structure. En raison de l'absorption forte de l'onde à cette fréquence, l'amplitude diminue de manière rapide suivant les z positifs. Cependant, il est assez clair que l'onde à l'intérieur de la structure se propage de la droite vers la gauche, c'est-à-dire dans le sens opposé à celui de l'onde incidente. Cette observation qui correspond à une onde à vitesse de phase négative est pour le moins surprenante puisque cette onde apparaît loin de toute résonance, dans une région où il n'y a aucune raison, d'après les calculs de la théorie de Maxwell Garnett, d'observer un tel comportement. Il est à noter que malgré une transmission faible (-32dB), nous avons choisi cette fréquence de 286 GHz car c'est celle où la propagation dans le sens rétrograde est la plus claire. Cependant, pour des fréquences proches, on observe aussi la propagation de phase dans le sens opposé à celle de l'onde incidente.

Bien sûr, la clarté de ces observations reste subjective ; nous devons donc utiliser une technique plus rigoureuse pour identifier les modes pouvant se propager dans la structure, et c'est ce que nous ferons dans le prochain paragraphe avec l'étude des modes de Bloch dans la structure.

V.4 Analyse des modes de Bloch dans la structure

Suite aux visualisations qualitatives du champ données dans la section V.3.3-a, laissant envisager la présence d'une zone d'indice négatif, nous nous attachons maintenant dans cette section à en obtenir une confirmation quantitative, en menant une analyse détaillée des modes de Bloch se propageant dans la structure. Nous espérons ainsi pouvoir mettre en évidence la présence de modes de Bloch rétrogrades.
Nous nous inspirons ici de la méthode d'analyse utilisée par nos collaborateurs californiens (équipe de F. Capolino, UC Irvine) dans la section III.4.

V.4.1 Méthodologie de détermination des modes de Bloch

Dans ce qui suit, nous avons choisi d'utiliser le champ **H** pour l'ajustement mais cette méthodologie est tout aussi valide pour le champ **E**. Nous avons ainsi extrait le module de la partie réelle du champ magnétique $\left|\mathrm{Re}(\mathbf{H}_{\text{ligne}})\right|$ et le module du champ magnétique complexe $\left|\mathbf{H}_{\text{ligne}}\right|$ sur une droite passant par le centre des petites sphères de rayons r_{ma} comme représenté sur la FIGURE V.27.

V.4.1-a Application du théorème de Bloch et formes mathématiques des ajustements

Selon le théorème de Bloch, le champ **H** dans la structure périodique infinie obéit à la forme [63, 121] :

$$\mathbf{H}(\mathbf{r},t) = \mathbf{u}_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})\mathrm{e}^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)} \tag{V.20}$$

Cette fonction $\mathbf{u}_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ traduit la périodicité du réseau et pour tout vecteur **R** du réseau de Bravais, $\mathbf{u}_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \mathbf{u}_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}+\mathbf{R})$. Dans notre cas (FIGURE V.27), la structure est périodique et infinie selon $\hat{\mathbf{e}}_x$ et $\hat{\mathbf{e}}_y$, et seulement partiellement périodique car non infinie selon $\hat{\mathbf{e}}_z$; cependant la taille de la cellule simulée est assez grande pour pouvoir utiliser le théorème de Bloch selon $\hat{\mathbf{e}}_z$ (en négligeant les effets d'interface).
La ligne sur laquelle est tracé le champ est définie par $x = y = 0$ et le vecteur d'onde incident est $\mathbf{k} = (0,0,k_z)$. En utilisant les propriétés d'isotropie de la structure (cubique), on sait que la direction de **k** est non modifiée et on peut alors écrire la forme du champ sur la ligne :

$$H_{\text{ligne}}(z,t) = u_{k_z}(0,0,z)\mathrm{e}^{ik_z\cdot z}\cdot\mathrm{e}^{-i\omega t} \tag{V.21}$$

avec $u_{k_z}(z) = u_{k_z}(z+a)$ et a le pas du réseau selon la direction z.
Nous cherchons à déterminer le ou les modes de Bloch dominants dans la structure, correspondants à un vecteur d'onde **k**. Pour cela, nous échantillonnons périodiquement la valeur du champ en prenant un point par cellule unitaire :

$$z_p = z_0 + p\cdot a, \quad \text{avec} \quad p\in\mathbb{N} \tag{V.22}$$

Puisque $u_{k_z}(z_p) = u_{k_z}(z_0)$, le champ aux points z_p a la forme :

$$H_{\text{ligne}}(z_p,t) = u_{k_z}(z_p)\mathrm{e}^{ik_z\cdot z_p}\cdot\mathrm{e}^{-i\omega t} = u_{k_z}(z_0)\mathrm{e}^{ik_z\cdot z_p}\cdot\mathrm{e}^{-i\omega t}. \tag{V.23}$$

On peut alors chercher une fonction d'ajustement $H_{\text{fit}}(z)$, passant par ces points, sous la forme d'une onde plane :

$$H_{\text{fit}}(z,t) = A_1\mathrm{e}^{ik_z\cdot(z-z_1)}\cdot\mathrm{e}^{-i\omega t}, \tag{V.24}$$

dont l'amplitude $A_1 = u_{k_z}(z_0)$ dépend du choix du point d'échantillonnage z_0 à l'intérieur de la cellule unitaire, et z_1 traduit un éventuel déphasage de l'onde plane en entrée.
L'équation (V.24) est seulement valable lorsqu'un seul mode de Bloch domine dans la structure. Lorsque ce mode est réfléchi, la fonction d'ajustement devient :

$$H_{\text{fit}}(z,t) = \left[A_1 \mathrm{e}^{ik_{z,1}\cdot(z-z_1)} + A_2 \mathrm{e}^{-ik_{z,1}\cdot(z-z_2)}\right] \cdot \mathrm{e}^{-i\omega t} \tag{V.25}$$

Enfin, parfois deux modes de Bloch sont excités et coexistent, ce qui donne la forme du champ suivante (sans réflexion) :

$$H_{\text{fit}}(z,t) = \left[A_1 \mathrm{e}^{ik_{z,1}\cdot(z-z_1)} + A_2 \mathrm{e}^{ik_{z,2}\cdot(z-z_2)}\right] \cdot \mathrm{e}^{-i\omega t} \tag{V.26}$$

où les paramètres A_1, B_1, z_1, z_2 sont des grandeurs réelles et $k_{z,1}, k_{z,2}$ sont des nombres complexes. Dans la suite, les unités des grandeurs d'ajustement seront : les amplitudes A_1, A_2 en $\mathrm{kA/m}$, les distances z_1, z_2 en mm et les vecteurs d'ondes en $\mathrm{rad/mm}$. Notons qu'on pourrait également considérer le cas plus complexe de la coexistence de 2 modes avec leurs réflexions, mais celui-ci ne se présentera pas pour nous.

Dans le cas de deux modes, il est à noter que l'ajustement des données par l'équation (V.26) est hautement non-linéaire. Le résultat dépend très fortement des paramètres initiaux et il est possible d'obtenir plusieurs solutions. De plus, nous n'avons à notre disposition que 11 points d'échantillonnage dans la direction z, compliquant encore un peu la tâche.

V.4.1-b Choix du point d'échantillonnage z_0

En principe, le choix du point d'échantillonnage z_0 est sans conséquence pour la détermination des vecteurs d'onde k_z des modes de Bloch dans la structure. En pratique, cependant, les ajustements numériques requis sont plus efficaces avec un choix optimal de z_0. Nous comparons pour cela les ajustements obtenus à la fréquence de 180 GHz (où aucun effet particulier n'est attendu), pour trois valeurs de z_0. Nous ne présupposons rien à priori sur la forme de l'ajustement nécessaire , et choisissons la forme la plus générale à deux modes (V.26).
Le cas a), présenté sur la FIGURE V.31, correspond à $z_0 = a$, c'est-à-dire des points d'échantillonnage pris au centre des petites sphères de rayons r_{ma}. Dans ce cas, l'ajustement selon la formule (V.26) donne les valeurs suivantes :

$$\begin{aligned} A_1 = 2,03 \quad \mathrm{Re}(k_{z,1}) = 8,30 \quad \mathrm{Im}(k_{z,1}) = 0,0451 \quad z_1 = 0,127 \\ A_2 = 0,224 \quad \mathrm{Re}(k_{z,2}) = -8,30 \quad \mathrm{Im}(k_{z,2}) = -0,0616 \quad z_2 = 0,0937 \end{aligned} \tag{V.27}$$

Le cas b) correspond au choix $z_0 = a/2$ et donc à des points d'échantillonnage situés à égale distance entre les petites sphères. Dans ce cas, l'ajustement donne :

$$\begin{aligned} A_1 = 1,27 \quad \mathrm{Re}(k_{z,1}) = 8,30 \quad \mathrm{Im}(k_{z,1}) = 0,0447 \quad z_1 = 0,127 \\ A_2 = 0,147 \quad \mathrm{Re}(k_{z,2}) = -8,28 \quad \mathrm{Im}(k_{z,2}) = 0,00225 \quad z_2 = 0,0923 \end{aligned} \tag{V.28}$$

Le cas c) ne correspond à aucun un point de symétrie particulier de la structure et a été pris à $z_0 = a/1,23$.

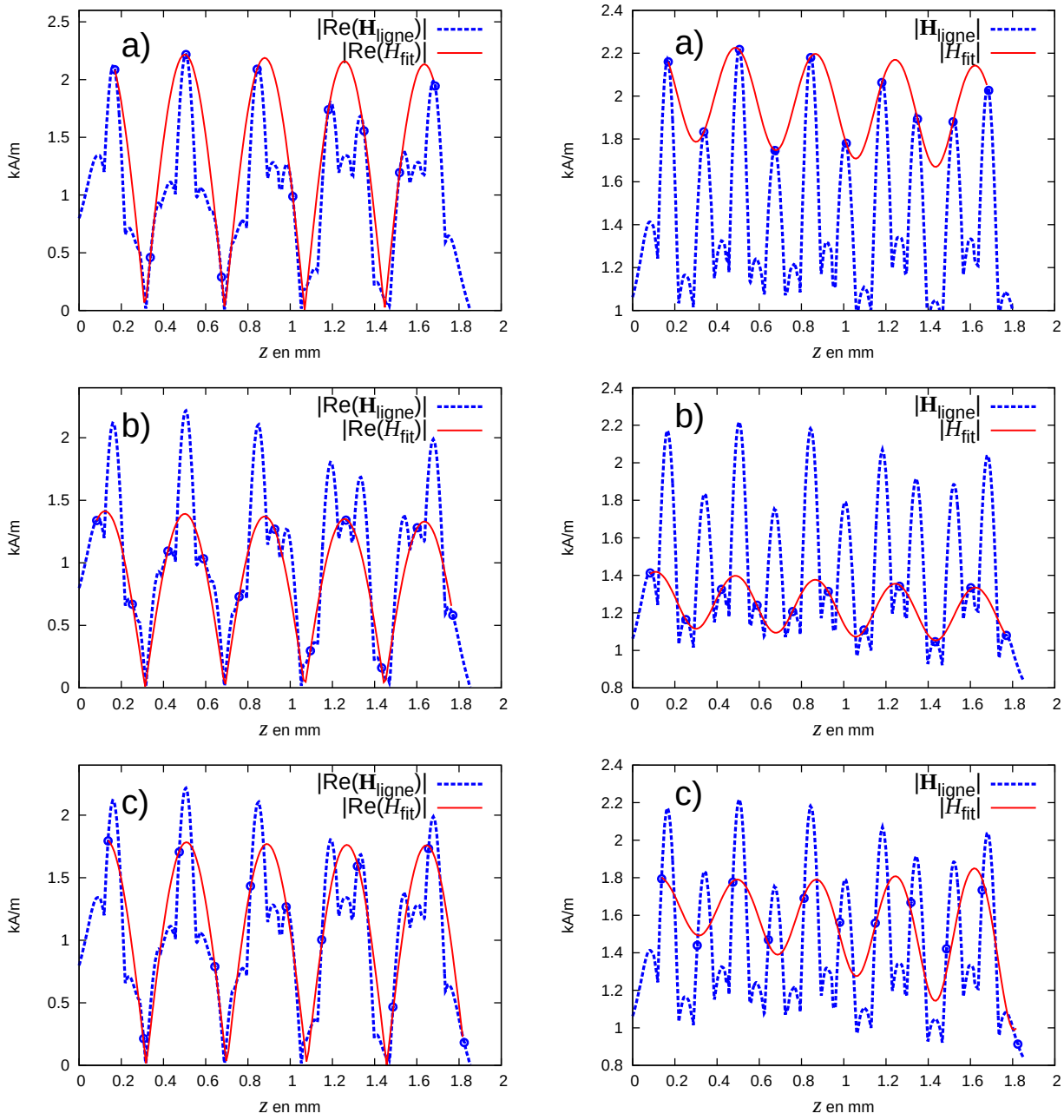

FIGURE V.31 – Résultat de l'ajustement de la valeur absolue de la partie réelle (à gauche) et du module (à droite) du champ magnétique $\mathbf{H}_{\text{ligne}}$ relevé dans la structure à une fréquence de 180 GHz et cela pour différentes valeurs de z_0, notées a), b), c).

L'ajustement donne :

$$\begin{aligned} A_1 = 1,67 \quad \mathrm{Re}(k_{z,1}) = 8,18 \quad \mathrm{Im}(k_{z,1}) = 0,0911 \quad z_1 = 0,128 \\ A_2 = 0,132 \quad \mathrm{Re}(k_{z,2}) = -8,62 \quad \mathrm{Im}(k_{z,2}) = -0,720 \quad z_2 = 0,115 \end{aligned} \tag{V.29}$$

En observant la FIGURE, nous remarquons que le cas c) correspond à l'ajustement le plus mauvais (un

point est hors de la courbe). Les résultats dans les cas a) et b) concordent bien et montrent que seul les paramètres A_1 et A_2 dépendent du choix de z_0 (en ne considérant que les variations supérieures à $6 \cdot 10^{-3}$). On remarque aussi que les modes 1 et 2 sont, à peu de choses près, opposés, $k_{z,1} = -k_{z,2}$. Ce comportement est caractéristique de la présence d'un seul mode et de sa réflexion dans la structure (nous y revenons ci-dessous).
Ainsi, avec le choix z_0 du cas a), l'amplitude du champ magnétique est plus importante limitant ainsi l'erreur relative due aux imprécisions de la simulation. C'est aussi dans ce cas que l'on est le plus proche de $k_{z,1} = -k_{z,2}$ et nous conserverons donc ce choix, dans la suite (échantillonnage au centre des petites sphères de rayons r_{ma}).

V.4.2 Détermination des modes de Bloch sur l'ensemble du spectre

A l'aide de la méthodologie détaillée dans la section précédente, nous analysons maintenant les modes de Bloch présents dans la structure sur l'ensemble du spectre de transmission pour la structure I.

V.4.2-a Modes de Bloch à basse fréquence

Nous reprenons l'ajustement de la section précédente dans le cas a) représenté sur la FIGURE V.31, effectué à basse fréquence (180 GHz), loin de toute résonance. Comme nous l'avons dit, les deux modes $k_{z,1}$, $k_{z,2}$, donnés par (V.27) sont, à peu de choses près, opposés. La partie imaginaire de la constante de propagation du mode 2 est négative, ce qui indique que son énergie se propage dans le sens des z négatifs. Ceci n'est possible qu'en cas de réflexion de l'onde incidente à la seconde interface : ce qui est confirmé par le fait que l'onde à l'intérieur de la structure est relativement peu atténuée (FIGURE V.28) et que, par conséquent, elle atteint la seconde interface ; et par le fait que l'impédance relative à 180 GHz est différente de l'unité (cf. FIGURE V.21), entraînant une réflexion de l'onde. On déduit donc que le second mode observé traduit la réflexion de l'onde incidente sur la seconde interface avec $k_{z,1} = -k_{z,2}$.
En utilisant une forme à deux modes (équation (V.26)), il est parfois difficile d'obtenir un ajustement convenable à cause de la grande sensibilité aux paramètres initiaux. Ainsi dans les cas où l'ajustement à deux modes indique clairement la présence d'une réflexion, comme précédemment, la qualité de l'ajustement est grandement améliorée en supposant d'emblée $k_{z,2} = -k_{z,1}$ afin de restreindre le nombre de paramètres d'ajustement, c'est-à-dire en ajustant avec la forme de l'équation (V.25). Le résultat du nouvel l'ajustement par cette équation, représenté sur la FIGURE V.32, est le suivant :

$$\begin{gathered} A_1 = 1,99 \quad \mathrm{Re}(k_{z,1}) = 8,30 \quad \mathrm{Im}(k_{z,1}) = 0,0442 \quad z_1 = 0,505 \\ A_2 = 0,230 \quad z_2 = 0,472 \end{gathered} \tag{V.30}$$

Nous observons que l'ajustement est très bon, et nous vérifions qu'il est très proche du résultat dans le cas a) de la section précédente (équation V.27). Comme la structure ne supporte qu'un seul mode de Bloch à cette fréquence, nous pouvons, grâce à l'équation $k_{z,1} = k_0 n$, lui assigner un indice optique :

$$n_1 = 2,20 + 0,012i \tag{V.31}$$

La valeur de n_{eff} extraite par la méthode de NRW (FIGURE V.22), à la fréquence de 180 GHz, est de $2,18 + 0,012i$. L'excellent accord avec la valeur ci-dessus valide ainsi la procédure d'ajustement numérique des modes de Bloch.

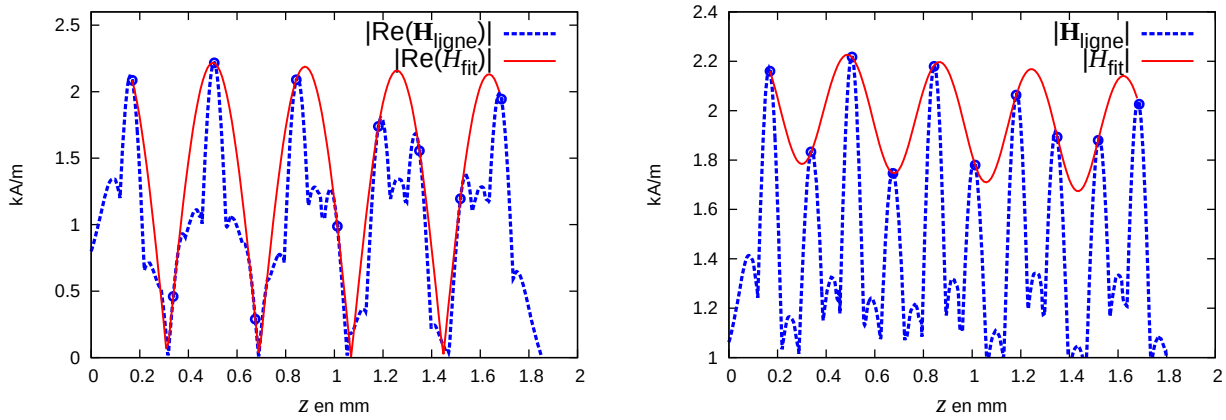

FIGURE V.32 – Résultat de l'ajustement de la valeur absolue de la partie réelle (à gauche) et du module (à droite) du champ magnétique $\mathbf{H}_{\text{ligne}}$ relevé dans la structure à une fréquence de 180 GHz en utilisant la fonction (V.25).

V.4.2-b Bande passante entre 235 et 290 GHz

Nous nous intéressons maintenant à la première bande passante, entre 235 et 290 GHz, après la résonance magnétique des grandes sphères de rayons r_{el}. L'inspection visuelle du champ à la fréquence de 286 GHz (FIGURE V.30) a laissé entrevoir la possibilité d'une propagation rétrograde. Nous cherchons maintenant à en faire la démonstration quantitative. Nous examinerons tout d'abord la situation à 286 GHz, plus facile à analyser, car l'onde se propage sans réflexion sur la face de sortie, puis la situation à 280 GHz où l'analyse doit être menée avec plus de soin, en raison de la présence d'une onde réfléchie.

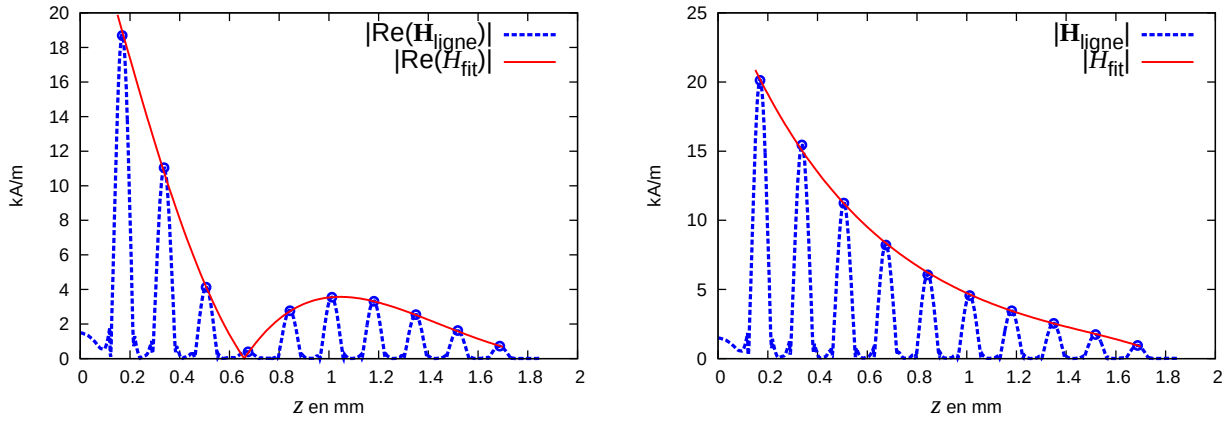

FIGURE V.33 – Résultat de l'ajustement de la valeur absolue de la partie réelle (à gauche) et du module (à droite) du champ magnétique $\mathbf{H}_{\text{ligne}}$ relevé dans la structure à une fréquence de 286 GHz.

Analyse modale à 286 GHz (mode unique sans réflexion) Nous montrons l'ajustement du champ à une fréquence de 286 GHz sur la FIGURE V.33 à partir de l'équation (V.25). Cet ajustement donne :

$$\begin{gathered} A_1 = 19,7 \quad \mathrm{Re}(k_{z,1}) = \pm 2,56 \quad \mathrm{Im}(k_{z,1}) = 1,77 \quad z_1 = 0,185 \\ A_2 = -0,0588 \quad z_2 = 0,780 \end{gathered} \tag{V.32}$$

On remarque que B est très petit et peut être négligé devant A : ceci confirme que la réflexion sur la face arrière est négligeable.
Le second point important est que le signe de $\mathrm{Re}(k_{z,1})$ ne peut être déterminé, les deux signes donnant des ajustements strictement équivalents (il est à noter que la même indétermination existait pour l'ajustement précédent (équation V.30), mais que dans ce cas, la propagation de l'onde étant clairement progressive, nous ne l'avons pas signalé).
À partir de la valeur du vecteur d'onde $k_{z,1}$, on peut assigner un indice au matériau à la fréquence de 286 GHz :

$$n = \pm 0,427 + 0,296i \tag{V.33}$$

Pour déterminer le signe correct de n, on peut par exemple étudier la dépendance temporelle du champ $\mathbf{H}_{\text{ligne}}$ afin de déterminer si sa propagation est progressive ou rétrograde. La visualisation brute de $\mathbf{H}_{\text{ligne}}$ peut être difficile à interpréter. Nous montrons ci-dessous qu'une analyse un peu plus fine l'améliore grandement.

D'après le théorème de Bloch (équation V.21), le champ extrait sur une ligne de la structure est de la forme (en supposant un seul mode de Bloch présent) :

$$H_{\text{ligne}}(z,t) = u_{k_z}(z)\mathrm{e}^{ik_{z,1}\cdot z}\cdot \mathrm{e}^{-i\omega t} \tag{V.34}$$

que nous avons ajusté par une fonction $H_{\text{fit}}(z,t) = A_1\mathrm{e}^{i[k_{z,1}\cdot(z-z_1)-\omega t]}$ aux points $z = z_p$ d'échantillonnages du champ H_{ligne} avec pour valeurs des paramètres celles données en (V.32). On remarque que :

$$\left|\mathrm{Re}(H_{\text{ligne}}(z,t))\right| = \left|u_{k_z}(z)\cdot\cos\left[\mathrm{Re}(k_{z,1})\cdot z - \omega t\right]\right| \cdot \mathrm{e}^{-\mathrm{Im}(k_{z,1})\cdot(z-z_1)} \tag{V.35}$$

Ainsi :

$$\frac{\left|\mathrm{Re}(H_{\text{ligne}}(z,t))\right|}{\left|A_1\mathrm{e}^{-\mathrm{Im}(k_{z,1})\cdot z}\right|} = \frac{\left|u_{k_z}(z)\cos\left[\mathrm{Re}(k_{z,1})\cdot z - \omega t\right]\right|}{A_1} \tag{V.36}$$

où $\mathrm{Im}(k_{z,1})$ et A_1 sont connus par l'ajustement (V.32) (le rôle de A_1 est simplement celui d'une normalisation). On trace alors les valeurs du quotient de gauche dans l'équation précédente issues de la simulation, ce qui permet de mettre en évidence la fonction $\left|u_{k_z}(z)\cdot\cos\left[\mathrm{Re}(k_{z,1})\cdot z - \omega t\right]\right|$ et d'observer son évolution. L'intérêt est de pouvoir visualiser l'évolution temporelle de l'onde dans une représentation qui s'affranchit de l'amortissement exponentiel $\mathrm{e}^{-\mathrm{Im}(k_{z,1})\cdot(z-z_1)}$. Nous montrons dans la FIGURE V.34 le résultat de cette visualisation, avec un échantillonnage sur une demi-période. On voit alors très clairement sur la figure que l'onde se déplace dans le sens des z négatifs au fur et à mesure que le temps croît. Cette représentation, désormais non ambigüe, justifie alors de prendre un signe négatif pour la partie réelle de l'indice extrait par ajustement (équation V.32).

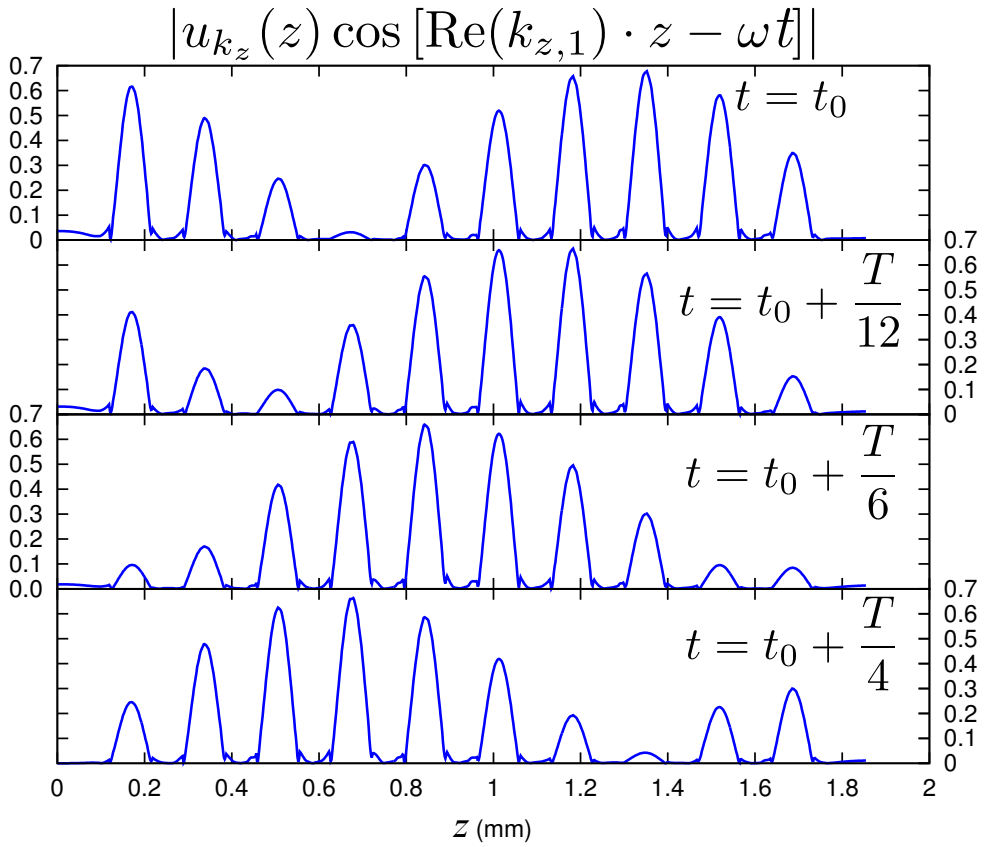

FIGURE V.34 – Représentation de $\left|u_{k_z}(z)\cos\left[\mathrm{Re}(k_{z,1})\cdot z-\omega t\right]\right|$ pour différentes instants de la propagation. On voit clairement la propagation de l'onde dans le sens négatif.

Nous en déduisons ainsi finalement la valeur de l'indice :

$$n=-0,427+0,296i \tag{V.37}$$

Ajustement en présence d'un mode et de sa réflexion Lorsque la transmission devient plus forte, l'onde peut atteindre la seconde extrémité de la structure pour donner naissance à une onde réfléchie. Lorsque c'est le cas, il devient très difficile de choisir le signe de l'indice d'après la simple représentation du champ dans la structure. Nous étudions à titre d'exemple, le champ à une fréquence de 280 GHz, représenté avec son ajustement sur la FIGURE V.35. Les paramètres de cet ajustement, effectué en utilisant l'équation (V.25), sont les suivants :

$$\begin{gathered} A_1=14,6 \quad \mathrm{Re}(k_{z,1})=\pm 6,57 \quad \mathrm{Im}(k_{z,1})=0,382 \quad z_1=0,196 \\ A_2=1,21 \quad z_2=-0,770 \end{gathered} \tag{V.38}$$

où le signe de $\mathrm{Re}(k_{z,1})$ est indéterminé.
Ceci correspond à un indice de :

$$n=\pm 1.12+0.065i \tag{V.39}$$

Pour trouver le signe, il nous faut aussi introduire la dépendance temporelle du champ dans la fonction d'ajustement et en observer l'évolution à partir des résultats de la simulation. L'équation pour l'a-

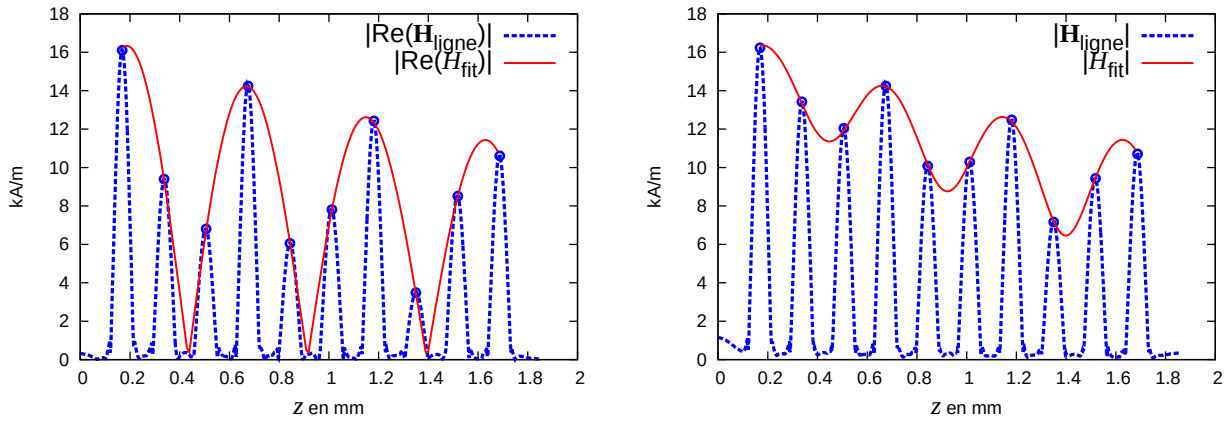

FIGURE V.35 – Résultat de l'ajustement de la valeur absolue de la partie réelle (à gauche) et du module (à droite) du champ magnétique $\mathbf{H}_{\text{ligne}}$ relevé dans la structure à une fréquence de 280 GHz.

justement en introduisant la dépendance temporelle est :

$$H_{\text{fit}}(z,t) = A_1 \mathrm{e}^{i[k_{z,1}\cdot(z-z_1)-\omega t]} + A_2 \mathrm{e}^{i[-k_{z,1}\cdot(z-z_2)-\omega t]} \tag{V.40}$$

Pour déterminer le signe de l'indice, nous procédons de la manière suivante : nous réalisons un ajustement du champ simulé $\mathbf{H}_{\text{ligne}}(t_0)$ pris au temps t_0 tel que l'amplitude en soit maximale (ce qui permet d'optimiser la qualité de l'ajustement et des valeurs de $A_1, A_2, k_{z,1}, z_1$: nous obtenons ainsi l'ajustement de l'équation (V.38).) Nous représentons ensuite le champ issu des simulations à un temps ultérieur t_1, que nous cherchons à comparer, sur la base de l'ajustement réalisée précédemment au temps t_0, avec les expressions mathématiques $H^+_{\text{fit}}(z,t_0)\cdot\mathrm{e}^{-i\omega(t_1-t_0)}$ et $H^-_{\text{fit}}(z,t_0)\cdot\mathrm{e}^{-i\omega(t_1-t_0)}$, où H^+_{fit} correspond à la valeur positive de $\mathrm{Re}(k_{z,1})$ (onde progressive) et H^-_{fit} correspond à la valeur négative (onde rétrograde). Une seule de ces deux options permet d'ajuster correctement le champ simulé à $t = t_1$, ce qui détermine de manière univoque le signe à retenir.
Pour illustrer cette procédure, nous montrons sur la FIGURE V.36 la justification du signe de $\mathrm{Re}(k_{z,1})$ qui doit être retenu dans (V.38). Les paramètres utilisés pour l'ajustement sont ceux de (V.38), et $t_1 = t_0 + 0.14T$.
Nous déterminons ainsi que le signe correct de $\mathrm{Re}(k_{z,1})$ est négatif. Ainsi, la vitesse de phase, et donc l'indice sont négatifs à cette fréquence. La valeur de l'indice à la fréquence de 280 GHz est finalement :

$$n = -1.12 + 0.065i \tag{V.41}$$

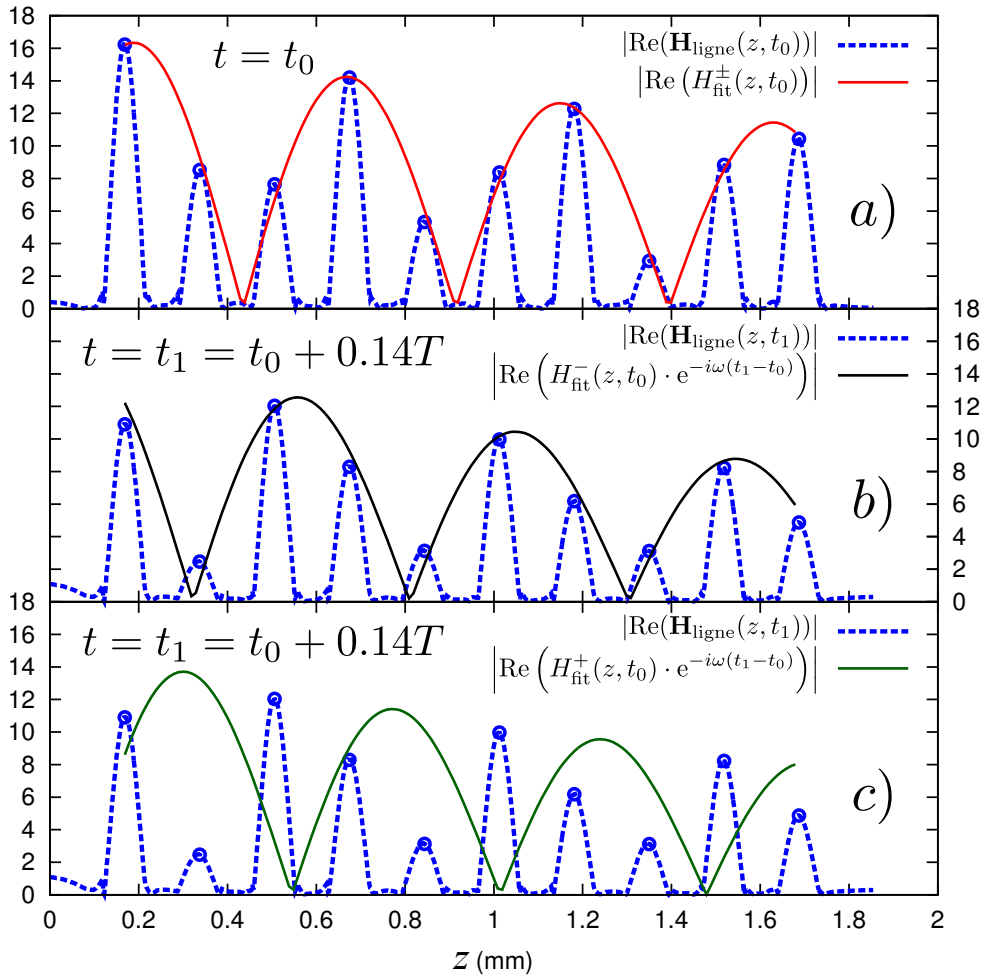

FIGURE V.36 – Exemple de détermination du signe de $\mathrm{Re}(k_{z,1})$ à une fréquence de 280 GHz à partir du champ simulé $\mathbf{H}_{\mathrm{ligne}}$ pris aux temps t_0 et t_1.
a) Ajustement au temps t_0. *b*) Ajustement correct au temps t_1 en choisissant la valeur négative de $\mathrm{Re}(k_{z,1})$.
c) Les données simulées ne sont pas ajustées si l'on choisit la valeur positive de $\mathrm{Re}(k_{z,1})$.

V.4.2-c Bande passante entre 310 et 320 GHz

Nous analysons maintenant le comportement de la structure dans la « bande passante » comprise entre 310 et 320 GHz, là où la théorie de Maxwell Garnett prévoit un indice négatif. Nous montrons sur la FIGURE V.37 l'ajustement du champ dans la structure à une fréquence de 315 GHz. Dans ce cas, il a été nécessaire de recourir à la formule d'ajustement plus générale à deux modes (équation V.26). Le résultat de l'ajustement pour les vecteurs d'onde est le suivant :

$$k_{z,1} = 2.39 + 3.75i \quad \text{et} \quad k_{z,2} = -9,09 + 1,45i \tag{V.42}$$

Ces résultats montrent qu'il existe (au moins) deux modes dans la structure, un rétrograde et l'autre progressif, avec des niveaux de pertes comparables. Il est à noter comme nous l'avons dit plus haut, que les ajustements à deux modes sont difficiles et très sensibles aux conditions initiales : on peut tout aussi bien trouver d'autres valeurs des paramètres d'ajustement, conduisant à un résultat acceptable, en changeant les valeurs initiales. Cependant, toutes les valeurs des paramètres trouvées par ajustement,

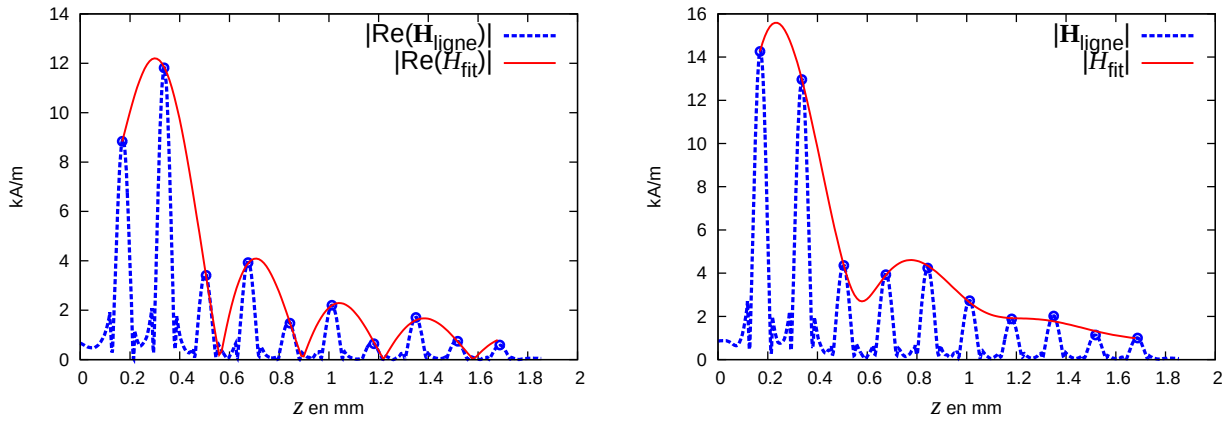

FIGURE V.37 – Résultat de l'ajustement de la valeur absolue de la partie réelle (à gauche) et du module (à droite) du champ magnétique $\mathbf{H}_{\text{ligne}}$ relevé dans la structure à une fréquence de 315 GHz.

ont pour point commun qu'elles sont la somme d'un mode rétrograde et progressif, qui coexistent dans la structure. Il est ainsi impossible, puisqu'il existe plusieurs modes se propageant dans la structure, d'assigner un indice effectif au matériau à cette fréquence.

V.4.3 Indice obtenu par ajustement des modes de Bloch

En appliquant les méthodes expliquées ci-dessus pour effectuer les ajustements par les modes de Bloch, nous pouvons extraire un indice (avec son signe) pour l'ensemble des fréquences où un seul mode (et éventuellement sa réflexion) existe dans la structure I. Cet indice est représenté sur la FIGURE V.38 et comparé à celui obtenu avec HFSS par extraction à partir de la méthode NRW. L'indice extrait par

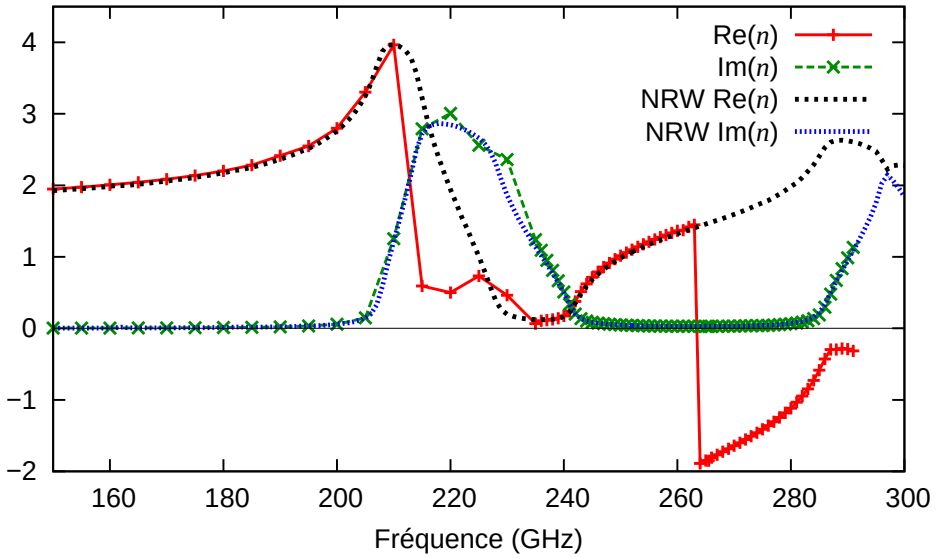

FIGURE V.38 – Comparaison entre l'indice extrait par la méthode de NRW et celui obtenu par ajustement du champ sur la droite pour la structure I.

ajustement montre de manière générale un très bon accord avec celui extrait par la méthode NRW, à

l'exception des zones où les pertes sont importantes. Dans ces zones, il devient très difficile de réaliser l'ajustement et cela se traduit par une grande imprécision sur l'indice obtenu par ajustement.
La conclusion majeure à tirer de cette figure, est l'existence d'une zone où l'indice effectif est négatif, qui n'est prévu ni par la théorie de Maxwell Garnett, ni par l'extraction par la méthode NRW.

C'est un résultat remarquable qui montre l'intérêt de ces structures de sphères bidisperses.

Les indices, obtenus de la même manière pour les structures II à V, sont représentés sur la FIGURE V.39. Dans tous les cas, on observe une zone d'indice négatif non prédite par la théorie de Maxwell

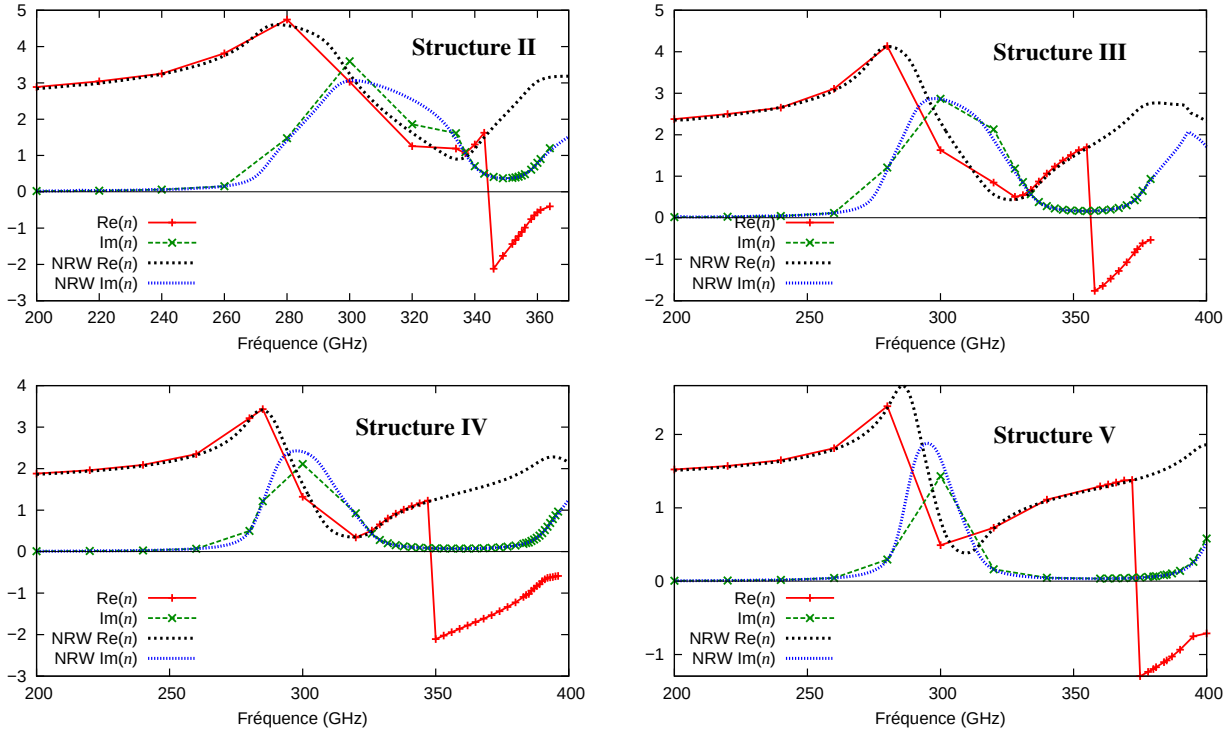

FIGURE V.39 – Comparaison entre l'indice extrait par la méthode de NRW et celui obtenu par ajustement du champ sur la droite pour les structures II à V.

Garnett, ni apparente dans les paramètres extraits par la méthode NRW. On arrive à obtenir une zone extrêmement intéressante d'indice négatif aux alentours de -1, -2, avec des pertes très faibles dû au fait que cette zone se trouve hors de la résonance. Ce résultat est potentiellement extrêmement intéressant.
On peut aussi remarquer que pour la structure V, aucune bande d'indice négatif n'est prévu par la théorie de Maxwell Garnett (cf. FIGURE V.10) ; pourtant, l'analyse modale met en évidence une bande d'indice négatif.
Nous notons qu'en comparant les structures I à V entre elles, il ne nous a pas été possible de mettre en évidence de tendances claires permettant de corréler simplement les caractéristiques observées comme la profondeur de la zone négative, sa largeur avec la fraction volumique des sphères.

Ces résultats obtenus par une analyse fine des modes se propageant dans les assemblages bidisperses de sphères montrent que se produisent des effets électromagnétiques complexes, probablement engendrés par les couplages entre particules, avec pour conséquence l'apparition de phénomènes comme des ondes rétrogrades et des zones d'indice négatif qui échappent à la prédiction analytique, et même aux techniques simples d'extraction des paramètres effectifs des simulations numériques utilisées habituellement.

V.5 Discussion et conclusions

Dans ce chapitre, nous cherchons à étendre des schémas initialement proposés pour obtenir des matériaux doublements négatifs dans la gamme gigahertz à la gamme térahertz, en considérant des assemblages bidisperses de sphères diélectriques, dans lesquels on s'arrange pour superposer en fréquence la résonance électrique dipolaire des grosses sphères avec la résonance magnétique dipolaire des petites sphères.
En choisissant comme matériau constitutif des sphères le dioxyde de titane TiO_2, nous avons dans un premier temps défini les conditions nécessaires, selon la théorie de Maxwell Garnett étendue, pour obtenir une permittivité négative dans le térahertz. Dans un second temps, le rapport entre tailles de sphères ainsi que l'arrangement géométrique pour observer l'émergence un indice négatif dans cette gamme de fréquence ont été précisés. Nous avons ensuite calculé les paramètres effectifs pour différentes structures dont la fraction volumique totale est comprise entre 25 et 65%. Ces résultats analytiques ont montré que pour pour observer une bande d'indice négatif, il est nécessaire d'utiliser de fortes fractions volumiques, beaucoup plus élevées que pour obtenir le même effet dans la gamme gigahertz.

Nous avons ensuite effectué une série de simulations numériques par éléments finis de ces différentes structures. Une analyse des spectres de transmission pour identifier les résonances de chaque catégorie de sphères a été menée, ainsi qu'une extraction des paramètres effectifs par la méthode NRW. La comparaison des paramètres effectifs avec ceux de la théorie de Maxwell Garnett a montré de profonds désaccord pour des fréquences supérieures à la fréquence de résonance magnétique des grandes sphères, et en particulier, aucune bande négative n'apparaît dans les paramètres effectifs extraits des simulations.

Néanmoins, des visualisations directes de la propagation du champ nous a laissé penser que celle-ci est complexe et appelle à une analyse plus fine en termes de modes de Bloch existant dans les structures. Les ajustements du champ simulé à l'intérieur des structure sous la forme de modes de Bloch ont ainsi montré qu'il est impossible d'assigner un indice à ces structures dans la gamme de fréquence dans laquelle l'indice négatif est prévu par la théorie de Maxwell Garnett, en raison de la présence de deux modes de Bloch dominants simultanément ; néanmoins, un de ces modes se trouve être à propagation de phase rétrograde. En outre, l'analyse modale de Bloch permet également, de mettre en évidence l'émergence d'une bande d'indice négatif à des fréquences inférieures, et ceci dans toutes les structures étudiées – y compris dans les cas où la théorie de Maxwell Garnett ne prévoit *pas* d'indice négatif. Nous avons ainsi trouvé des zones particulièrement intéressantes d'indice négatif accompagnées de pertes très faibles, car situées hors des résonances des sphères. En outre, les indices extraits de l'analyse modale correspondent très bien à ceux issus des méthodes d'extraction de type NRW, sauf dans les régions négatives où la méthode NRW donne un indice positif.

Ces résultats sur la présence d'un indice négatif restent cependant à confirmer, en particulier à cause de la présence d'une discontinuité de l'indice lors du passage des valeurs positives aux valeurs négatives. Ceci pourrait traduire éventuellement un changement de zone de Brillouin ayant échappé à notre analyse. L'approche adéquate pour lever cette ambiguïté consisterait sans doute à faire une étude complète du diagramme de bande de la structure bidisperse à la façon des cristaux photoniques.

Enfin, s'ils sont confirmés, il reste à comprendre les mécanismes physiques exacts à l'origine de ces comportements apparemment négatifs se produisant hors des zones de recouvrement des résonances électriques et magnétiques des sphères. Il est à noter que des comportements similaires dans des milieux *monodisperses* à hautes fractions volumiques ont récemment été observés dans la gamme GHz, et ont été expliqués de manière qualitative par la présence d'une onde de type magnéto-inductif (« Magneto-inductive wave » en anglais) [120]. Ces ondes, introduites par Shamonina et al. en utilisant le formalisme

des lignes à transmission, apparaissent lorsque des résonateurs magnétiques sont fortement couplés entre eux [122].

Sur le chemin de la compréhension du mécanisme à l'œuvre, une étape importante serait la généralisation de la méthode d'analyse SDA présentée dans le chapitre III sur les systèmes monodisperses modélisables par des dipôles magnétiques, au cas bidisperse, en tenant compte à la fois de dipôles magnétiques et électriques et de leurs couplages mutuels. Cette généralisation est en cours dans l'équipe de F. Capolino (UC Irvine). On pourrait également envisager une généralisation ultérieure introduisant des couplages multipolaires, qui s'avérera peut-être nécessaire dans ces structures à très forte fraction volumique.

Conclusion Générale

Durant nos travaux de thèse, nous nous sommes intéressé à la modélisation de milieux composites constitués de sphères diélectriques de permittivité élevée, et avons étudié dans quelles conditions ces matériaux montrent des propriétés magnétiques ou un indice négatif dans la gamme térahertz.

Dans la première partie de ce manuscrit, nous avons rappelé les bases de l'électromagnétisme et introduit les principales propriétés des métamatériaux électromagnétiques. Nous avons vu, à travers les techniques usuelles de fabrication de ces dispositifs, l'avantage d'utiliser des techniques d'auto-assemblage pour l'obtention de métamatériaux tridimensionnels. Nous avons finalement dressé un état de l'art rapide des travaux récents consacrés aux milieux composites de sphères diélectriques, pour l'obtention de métamatériaux à indice négatif.

Le second chapitre a ensuite été dévoué à la présentation des différentes théories utilisées pour la modélisation des milieux composites : la théorie de Mie de diffusion de la lumière par une sphère, la théorie du milieu effectif de Maxwell Garnett, ainsi que de l'outil de simulation numérique par éléments finis, méthode numérique que nous avons largement utilisée au cours de notre doctorat.

Dans la troisième partie, nous avons étudié la modélisation de milieux composites de sphères diélectriques pour l'obtention de métamatériaux présentant des propriétés de magnétisme artificiel dans la gamme térahertz. Nous avons présenté nos résultats sur la recherche des meilleurs matériaux diélectriques constitutifs pour les particules, devant à la fois être de permittivité élevée et posséder de faibles pertes dans cette gamme de fréquence. Les meilleurs candidats ont été retenus et leurs caractéristiques utilisées pour effectuer des prévisions analytiques à partir de la théorie de Maxwell Garnett. Ces prévisions ont montré qu'il est possible d'obtenir un matériau magnétique à ces fréquences, présentant notamment une zone de perméabilité négative. Ces résultats, en ce qui concerne le meilleur candidat, TiO_2, ont ensuite été confrontés à des simulations numériques par les éléments finis et ont montré un bon accord pour des faibles fractions volumiques et des réseaux cubiques. En ce qui concerne les réseaux non-cubiques (réseaux tétragonaux ou orthorhombiques), l'accord avec la théorie de Maxwell Garnett étendue est bon seulement tant que l'anisotropie de la maille cristalline reste limitée. Enfin, nous avons présenté une modélisation des structures étudiées à l'aide de l'approximation du dipôle unique (SDA), effectuée par l'équipe de Filippo Capolino de l'université de Californie (Irvine), que nous avons confrontée à nos simulations numériques. Ce modèle, prenant en compte toutes les interactions dipolaires entre particules, présentent un très bon accord pour des réseaux cubiques de sphères de TiO_2 jusque des fractions volumiques modérées (jusque 20%), puis un désaccord croissant aux plus fortes fractions volumiques, que nous attribuons à l'apparition d'interactions multipolaires lorsque la distance inter-particule diminue.

La quatrième partie a quant à elle été consacrée à l'étude de l'influence de la distribution en taille des

résonateurs sur les propriétés des assemblages étudiés dans le chapitre précédent. Ces résultats, basés sur la théorie de Maxwell Garnett étendue, ont montré qu'une dispersion en taille trop importante est néfaste pour l'émergence d'une zone de perméabilité négative, qui finit par disparaître. Nous avons pu établir une certaine marge de tolérance acceptable pour les processus de fabrication chimique. Néanmoins, dans certaines configurations avec des distributions en taille contrôlées, nous avons mis en évidence que celle-ci peut amener à élargir la zone de perméabilité négative par rapport au cas monodisperse, et qu'il était possible d'obtenir ainsi de larges bandes de perméabilité proche de zéro.

Enfin, le cinquième et dernier chapitre a été consacré à l'étude théorique et numérique de métamatériaux à indice négatif (toujours dans la gamme térahertz) formés d'un assemblage bidisperses de sphères de TiO_2, dans lequel les grandes sphères créent une résonance électrique se recouvrant en fréquence avec la résonance magnétique des petites. Ce type de système a déjà démontré un indice négatif dans la gamme gigahertz. Nos calculs fondés sur la théorie de Maxwell Garnett étendue ont montré que, dans la gamme térahertz, il faut très fortement concentrer les structures pour qu'un indice négatif puisse émerger. Nous avons ensuite procédé à une série de simulations numériques suivies d'extractions des paramètres effectifs qui n'ont pas confirmé ces prédictions. Nous avons alors procédé à une analyse modale, plus fine, des modes de Bloch se propageant dans la structure ; cette analyse a permis de mettre en évidence l'existence d'une bande d'indice apparemment négatif à des fréquences nettement inférieures à la zone de recouvrement des résonances électriques et magnétiques des deux types de sphères, et ceci dans toutes les structures étudiées – y compris dans les cas où la théorie de Maxwell Garnett ne prévoit elle-même *pas* d'indice négatif. Nous avons ainsi mis en évidence des zones particulièrement intéressantes d'indice négatif accompagnées de pertes très faibles, car situées hors des résonances des sphères. Le mécanisme exact d'apparition de cette bande négative reste encore à élucider.

L'un des buts initiaux de nos travaux de thèse était de fournir un support théorique pour la fabrication par des équipes de chimistes de métamatériaux formés de particules diélectriques de forte permittivité. Néanmoins, toute synthèse ou autre processus chimique implique l'apparition de distribution de taille, de forme, et du désordre dans l'organisation spatiale de l'assemblage. Il nous semble ainsi important, comme prolongement des travaux de cette thèse, d'étudier comment à la fois les arrangements monodisperses (magnétisme artificiel) et bidisperses (indice négatif) sont affectés par un désordre de forme et de position (la question du désordre en taille ayant été partiellement traitée dans le cadre de nos travaux). Des efforts de synthèse chimique et d'assemblage sont actuellement en cours au Laboratoire Ondes et Matière d'Aquitaine et devraient permettre d'obtenir des mesures expérimentales dans un avenir relativement proche.

En ce qui concerne les arrangement bi-disperses, nos résultats demandent à être complétés par une étude complète du diagramme de bandes selon une approche de type cristal photonique. Dans le cas où la bande d'indice négatif serait confirmée, les mécanismes physiques sous-jacents restent encore à expliquer. De manière très intéressante, ce même genre de comportement semble aussi être observé dans les arrangements *mono-disperses* de haute densité [120], dans lesquels les couplages entre particules sont prédominants. Un effort théorique dans ce sens serait donc extrêmement utile.

On peut imaginer d'utiliser un modèle de ligne à transmission dans lesquels les couplages sont explicitement pris en compte et ainsi mettre en évidence le, ou les phénomènes à l'origine de l'émergence d'un indice négatif. Alternativement, nos collaborateurs californiens (F. Capolino, UC Irvine) sont actuellement en train de développer une description de type SDA pour les arrangements bidisperses, tenant compte à la fois du caractère dipolaire électrique et magnétique des sphères et de leurs couplages

mutuels. L'application de cette description nous permettra de comprendre si les mécanismes dipolaires sont suffisants pour expliquer les phénomènes que nous avons observés dans les structures bidisperses ou bien si des effets multipolaires doivent être évoqués.

Annexe I : Théorème de Poynting

Théorème général

Nous écrivons ici la démonstration du théorème de Poynting, décrit au paragraphe I.2.3, à partir des équations de Maxwell. En prenant la différence entre l'équation de Maxwell-Ampère (I.8c) multipliée par **E** et Maxwell-Faraday (I.8d) multipliée par **H**, on obtient l'égalité suivante :

$$\mathbf{H}\cdot(\nabla\times\mathbf{E})-\mathbf{E}\cdot(\nabla\times\mathbf{H})=-\mathbf{H}\cdot\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t}-\mathbf{E}\cdot\left(\frac{\partial\mathbf{D}}{\partial t}+\mathbf{J}\right) \tag{43}$$

En identifiant le produit mixte suivant $\nabla\cdot(\mathbf{E}\times\mathbf{H})=\mathbf{H}\cdot(\nabla\times\mathbf{E})-\mathbf{E}\cdot(\nabla\times\mathbf{H})$, l'équation (43) devient :

$$\nabla\cdot(\mathbf{E}\times\mathbf{H})=-\mathbf{H}\cdot\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t}-\mathbf{E}\cdot\left(\frac{\partial\mathbf{D}}{\partial t}+\mathbf{J}\right)$$

En utilisant les équations constitutives (I.10), on obtient :

$$\nabla\cdot(\mathbf{E}\times\mathbf{H})=-\frac{\partial}{\partial t}\left[\frac{1}{2}\left(\mu\mathbf{H}^2+\varepsilon\mathbf{E}^2\right)\right]-\mathbf{J}\cdot\mathbf{E} \tag{44}$$

On définit le vecteur de Poynting $\mathbf{\Pi}$:

$$\mathbf{\Pi}=\mathbf{E}\times\mathbf{H}$$

et la densité volumique d'énergie électromagnétique w :

$$w=\frac{1}{2}\left(\varepsilon E^2+\mu H^2\right)$$

Et la relation (44) devient :

$$-\nabla\cdot\mathbf{\Pi}=\mathbf{J}\cdot\mathbf{E}+\frac{\partial w}{\partial t}$$

En intégrant cette expression sur un volume V :

$$-\iiint_V\nabla\cdot\mathbf{\Pi}\,\mathrm{d}V=\iiint_V\mathbf{J}\cdot\mathbf{E}\,\mathrm{d}V+\iiint_V\frac{\partial w}{\partial t}\,\mathrm{d}V$$

En utilisant le théorème de Green-Ostrogradski, et en notant **n** le vecteur normal sortant à la surface et $\mathrm{d}\Sigma$ l'élément de surface, on obtient l'équation (I.20) :

$$-\oiint_S\mathbf{\Pi}\cdot\mathbf{n}\,\mathrm{d}\Sigma=\iiint_V\mathbf{J}\cdot\mathbf{E}\,\mathrm{d}V+\frac{1}{2}\iiint_V\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon E^2+\mu H^2)\,\mathrm{d}V$$

Forme du théorème pour des champs harmoniques en notation complexe

Dans cette section, nous rappelons la forme du théorème de Poynting lorsque les champs ont une dépendance temporelle harmonique en $e^{i\omega t}$ et que la notation complexe est utilisée. Seule la partie réelle des grandeurs physiques a un sens expérimental mesurable. Ce sont donc à ces dernières que nous devons nous intéresser.
La moyenne temporelle d'une grandeur $\mathbf{A}$ quelconque sur la période T est :

$$\overline{\mathbf{A}} = \frac{1}{T}\int_0^T \mathbf{A}\,\mathrm{d}t$$

La partie réelle s'écrit :

$$\mathrm{Re}(\mathbf{A}) = \frac{1}{2}(\mathbf{A}+\mathbf{A}^*)$$

et le produit de deux parties réelles de deux grandeurs physiques $\mathbf{A}_1$ et $\mathbf{A}_2$ est :

$$\begin{aligned}\mathrm{Re}(\mathbf{A}_1)\cdot\mathrm{Re}(\mathbf{A}_2) &= \frac{1}{4}\left(\mathbf{A}_1(\mathbf{r})e^{-i\omega t}+\mathbf{A}_1^*(\mathbf{r})e^{i\omega t}\right)\cdot\left(\mathbf{A}_2(\mathbf{r})e^{-i\omega t}+\mathbf{A}_2^*(\mathbf{r})e^{i\omega t}\right)\\ &= \frac{1}{2}\mathrm{Re}\left(\mathbf{A}_1^*(\mathbf{r})\mathbf{A}_2(\mathbf{r})+\mathbf{A}_1(\mathbf{r})\mathbf{A}_2(\mathbf{r})e^{-2i\omega t}\right)\end{aligned}$$

En prenant la moyenne temporelle, le terme $e^{-2i\omega t}$ s'annule et le produit d'intérêt devient :

$$\overline{\mathrm{Re}(\mathbf{A}_1)\cdot\mathrm{Re}(\mathbf{A}_2)} = \frac{1}{2}\mathrm{Re}\left(\mathbf{A}_1^*(\mathbf{r})\mathbf{A}_2(\mathbf{r})\right) \tag{45}$$

La puissance moyenne dissipée dans le matériau s'écrit $\overline{\mathrm{Re}(\mathbf{J})\cdot\mathrm{Re}(\mathbf{E})}$ d'après la section précédente. En appliquant la relation (45) : $\overline{\mathrm{Re}(\mathbf{J})\cdot\mathrm{Re}(\mathbf{E})} = \frac{1}{2}\mathrm{Re}\left(\mathbf{J}^*\cdot\mathbf{E}\right)$.
Pour accéder à cette quantité, on part du complexe conjugué de l'équation (I.8c) multipliée par $\mathbf{E}$:

$$\frac{1}{2}\mathbf{J}^*\cdot\mathbf{E} = \frac{1}{2}\mathbf{E}\cdot\left(\nabla\times\mathbf{H}^* - i\omega\mathbf{D}^*\right)$$

En utilisant la relation $\nabla\cdot(\mathbf{E}\times\mathbf{H}^*) = \mathbf{H}^*\cdot(\nabla\times\mathbf{E}) - \mathbf{E}\cdot(\nabla\times\mathbf{H}^*)$, on peut écrire :

$$\frac{1}{2}\mathbf{J}^*\cdot\mathbf{E} = \frac{1}{2}\left[\mathbf{H}^*\cdot(\nabla\times\mathbf{E}) - \nabla\cdot(\mathbf{E}\times\mathbf{H}^*) - i\omega\mathbf{E}\cdot\mathbf{D}^*\right]$$

et en utilisant (I.8d), on obtient :

$$\frac{1}{2}\mathbf{J}^*\cdot\mathbf{E} = \frac{1}{2}\left[-\nabla\cdot(\mathbf{E}\times\mathbf{H}^*) - i\omega(\mathbf{E}\cdot\mathbf{D}^* - \mathbf{B}\cdot\mathbf{H}^*)\right]$$

On définit le vecteur de Poynting complexe $\boldsymbol{\Pi}$:

$$\boldsymbol{\Pi} = \frac{1}{2}(\mathbf{E}\times\mathbf{H}^*) \tag{46}$$

$$\frac{1}{2}\mathbf{J}^*\cdot\mathbf{E} = -\nabla\cdot\boldsymbol{\Pi} - \frac{1}{2}i\omega(\mathbf{E}\cdot\mathbf{D}^* - \mathbf{B}\cdot\mathbf{H}^*)$$

En supposant le milieu linéaire, isotrope, sans couplages magnéto-électrique (équation (I.10)), on obtient :

$$\frac{1}{2}\mathbf{J}^* \cdot \mathbf{E} = -\nabla \cdot \mathbf{\Pi} - \frac{1}{2} i\omega(\varepsilon^* |E|^2 - \mu |H|^2)$$

En introduisant la conductivité complexe (I.2.2-a), $\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}$, on obtient :

$$-\nabla \cdot \mathbf{\Pi} = -\frac{1}{2}\left[(\sigma^* + i\omega\varepsilon^*)|E|^2 - i\omega\mu|H|^2\right]$$

En intégrant sur le volume V fermé par une surface S et en prenant la partie réelle, on trouve (I.21) :

$$-\oiint_S \mathrm{Re}(\mathbf{\Pi}) \cdot \mathbf{n}\, \mathrm{d}\Sigma = \frac{1}{2} \iiint_V \left[(\mathrm{Re}(\sigma) + \omega \mathrm{Im}(\varepsilon))|E|^2 + \omega \mathrm{Im}(\mu)|H|^2)\right] \mathrm{d}V$$

Annexe II : Procédure d'extraction des paramètres effectifs

Comme nous l'avons mentionné dans la partie II.3.3-a, l'extraction de Nicolson-Ross-Weir (NRW) pose des problèmes de choix de branche complexe quand l'épaisseur selon la direction de propagation est supérieure à plusieurs longueurs d'ondes. L'origine de ces problèmes vient de la présence la fonction arccos dans la formule d'extraction de l'indice (II.85) à partir des coefficients de réflexion r et de transmission t, complexes :

$$\mathrm{Re}(n) = \pm\mathrm{Re}\left(\frac{\arccos\left(\frac{1}{2t'}[1-(r^2-t'^2)]\right)}{kd}\right) + \frac{2\pi m}{kd} \tag{47a}$$

$$\mathrm{Im}(n) = \pm\mathrm{Im}\left(\frac{\arccos\left(\frac{1}{2t'}[1-(r^2-t'^2)]\right)}{kd}\right) \tag{47b}$$

où $t' = \mathrm{e}^{ikd}t$ et m un entier. Dans ce qui suit, nous expliquons comment choisir automatiquement la branche complexe dans cette extraction. Pour commencer nous détaillons les propriétés de la fonction arccos dans le plan complexe, puis nous explicitons le script du programme Maple permettant d'effectuer la procédure de manière automatique.

Fonction arccosinus dans le plan complexe

On considère la fonction cosinus dans le plan complexe, qui a tout nombre complexe a associe un nombre complexe b par l'équation

$$\cos(a) = b, \quad (a,b) \in \mathbb{C}. \tag{48}$$

Nous avons représenté cette fonction sur la FIGURE 40 avec la partie imaginaire de b représenté par la hauteur sur le graphe et la partie réelle par la couleur. Nous remarquons sur la figure que b n'a pas un unique antécédent par la fonction cos. En effet tout les points de la figure ayant une même hauteur et la même couleur sont les mêmes points b qui correspondent à des points a de l'ensemble de départ différent. Ainsi la fonction inverse, arccos dans le plan complexe :

$$\arccos(\cos(a)) = \arccos(b) \tag{49}$$

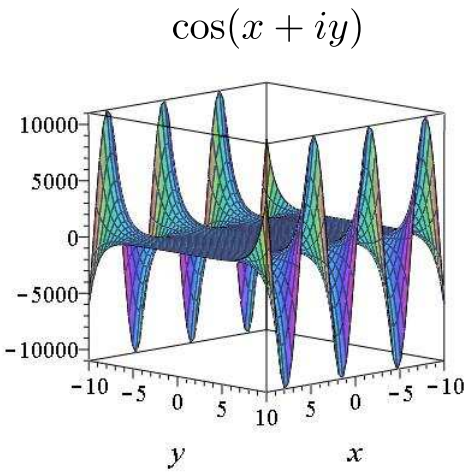

FIGURE 40 – Représentation de la fonction $\cos(x+iy)$ dans le plan complexe. La partie imaginaire est représenté par la hauteur et la partie réelle par la couleur.

n'a pas une solution unique et toutes les solutions possibles (que l'on peut identifier à partir de la figure) de cette relation sont :

$$\arccos(b) = \pm a + 2k\pi, \qquad k \in \mathbb{Z} \tag{50}$$

Avec ces solutions, on retrouve la forme des équations (47) et on comprend d'où vient le facteur $2\pi m$ intervenant dans la partie réelle.
La fonction arccos peut être réécrite sous une forme plus explicite en partant de l'égalité :

$$\cos(\arccos(b)) = b, \qquad b \in \mathbb{C} \tag{51}$$

on appelle $u = \arccos(b)$ et on développe la fonction cosinus sous forme exponentielle :

$$\begin{aligned} & e^{iu} + e^{-iu} = 2b \\ \Rightarrow \quad & \left(e^{iu}\right)^2 - 2b \cdot e^{iu} + 1 = 0 \end{aligned}$$

Ce qui donne pour $\arccos(b) = u$, après résolution de l'équation du second degré :

$$\arccos(b) = -i \ln\left(b \pm \sqrt{b^2 - 1}\right) \tag{52}$$

C'est cette forme qui est employée pour les calculs et grâce à elle, on peut déterminer les parties du plan complexe ou la fonction est multivaluée.
Une fonction multivaluée ne peut pas être représenté de manière continue dans le plan complexe. Les lignes de discontinuités sont appelées coupures de branche (« branch cuts ») ; elles sont généralement non uniques et choisies par convention pour simplifier les calculs. Dans notre cas, pour extraire les paramètres effectifs, nous utilisons le logiciel Maple dont la coupure de branches pour $\arccos(x+iy)$ est prise en :

$$y = 0, \quad \text{et} \quad x \in]-\infty, -1[\cup]1, \infty[\tag{53}$$

comme représenté sur la FIGURE 41.

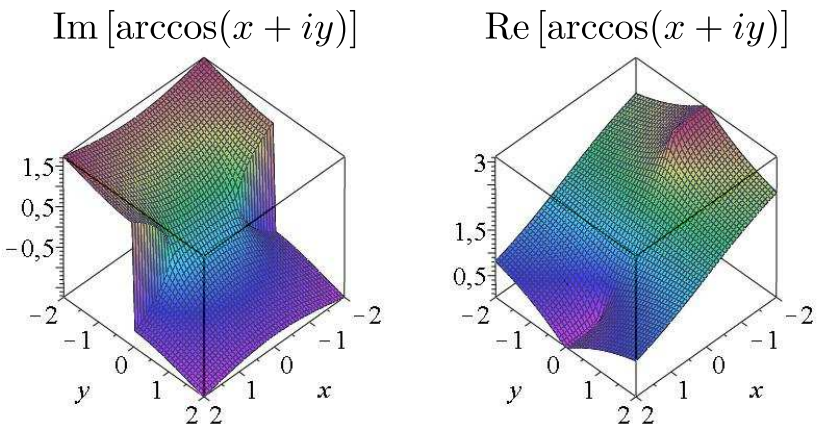

FIGURE 41 – Partie imaginaire (à gauche) et partie réelle (à droite) et de la fonction $\arccos(x+i\cdot y)$. On remarque la discontinuité en $y=0$ dans $\mathrm{Im}\,(\arccos(x+i\cdot y))$.

Script de recollement de branches

Afin d'éviter les erreurs du à la discontinuité de la fonction arccos lorsque l'on utilise la formule (47) (indetermination de signe et de m), nous avons écrit une procédure permettant de choisir correctement la branche et le signe. Nous avons représenté sur la FIGURE 42, l'indice effectif extrait des simulations, avant, et après correction par notre procédure. On remarque sur la courbe non-modifiée de nombreuses discontinuités.

L'explication de la procédure qui suit dépend complètement du choix des coupures de branche. De plus, il a été développé avec le logiciel Maple et donc écrit dans la syntaxe de ce logiciel.

On considère maintenant un nombre complexe $b = Ae^{i\phi}$, d'argument ϕ et de module A. Avec cette nota-

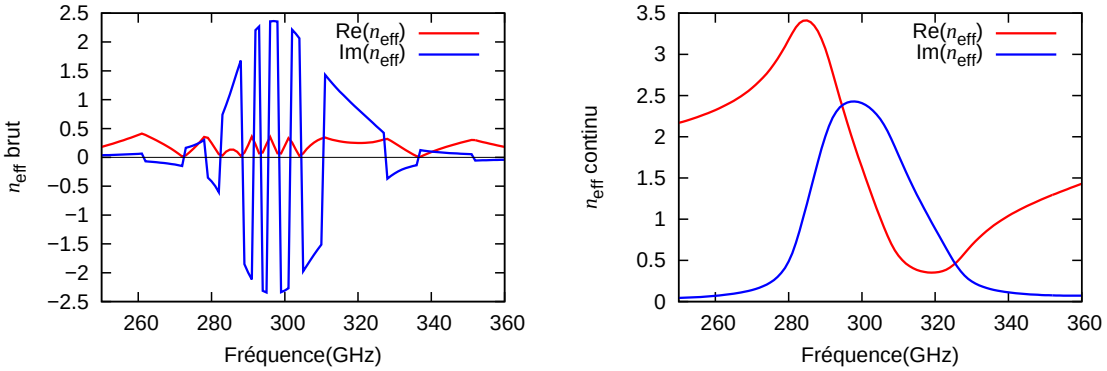

FIGURE 42 – Extraction de l'indice type réalisée en utilisant l'équation (II.85) sans procédure (à droite) et avec procédure (à gauche).

tion, les discontinuités de la fonction $\arccos(b)$ ont lieu lorsque :

$$\phi = 0 \pm n\pi, \qquad n \in \mathbb{N} \tag{54}$$

Dans le cas de l'équation (47), nous avons $b = \frac{1}{2t'}[1-(r^2-t'^2)]$ qui est une fonction complexe dépendant de la fréquence. Pour recoller correctement le signe et les branches de l'indice il nous faut suivre le « trajet »de la fonction ϕ dans le plan complexe, et, chaque fois qu'elle passe par la discontinuité, lui appliquer la correction adéquate.
Le premier problème que nous avons rencontré est inhérent à une fonction définie modulo 2π comme l'est la fonction ϕ. En effet, dans maple, la valeur de l'argument d'un nombre complexe est comprise entre $-\pi$ et π et de manière générale cette fonction argument ne sera pas continue. Nous avons donc écrit un script pour rendre l'argument de b continu. Ce script est la Procédure 1, intitulée `arg`, écrite ci-dessous dans la syntaxe de Maple dont l'effet est représenté sur la FIGURE 43.

Procédure 1:

```
arg:= proc(a::list)
local c,i,b;
c:=[evalf(argument(a[1]))]:
for i from 2 by 1 to nops(a) do
b:=evalf(-argument(a[i-1])+argument(a[i]));
if |b|<evalf(π) then
c:=[op(c), c[i-1] + b];
else
if sign(evalf(argument(a[i])))<0 then
c:=[op(c),c[i-1]+(2π-argument(a[i-1])+argument(a[i]))];
else
c:=[op(c),c[i-1]-(2π+argument(a[i-1])-argument(a[i]))];
end if;
end if;
end do;
c;
end proc;
```

Maintenant que l'argument est devenu continu, on peut déterminer quand il rencontre les discontinuités et effectuer le recollement adéquat de la fonction arccos. Pour cela, toutes les solutions possibles données par l'équation (50) sont utilisées pour rendre l'indice continu. Nous avons établi que le recollement adéquat est réalisé en prenant les valeurs indiqué sur la FIGURE 44 suivant la valeur de l'argument.

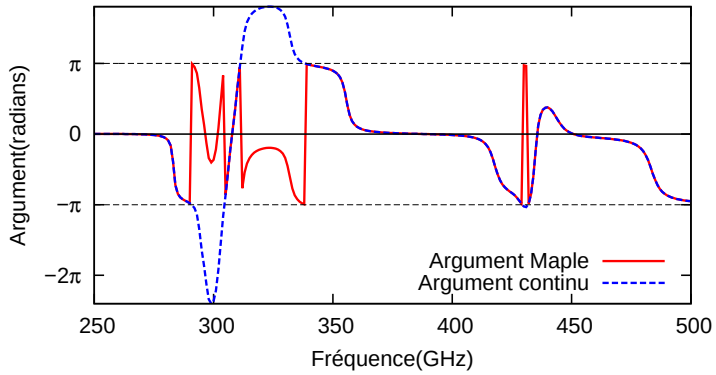

FIGURE 43 – Effet de la **Procédure 1** sur l'argument d'une fonction.

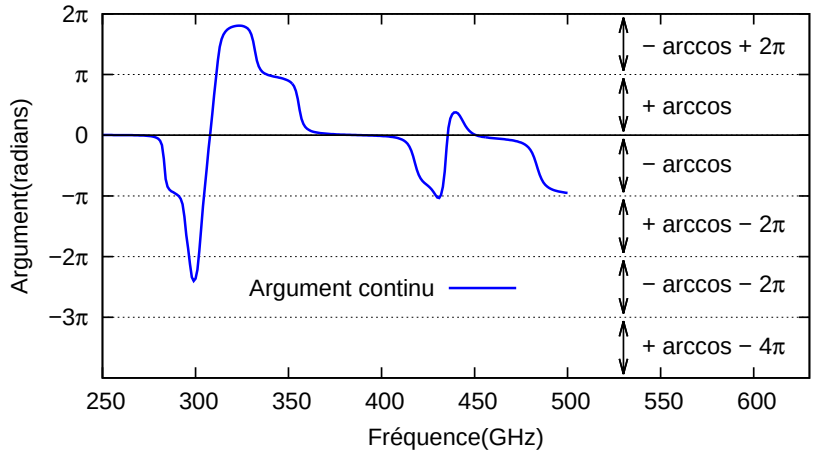

FIGURE 44 – Schéma expliquant comment choisir le signe et de la valeur de m dans (47) en fonction de la valeur de l'argument continu.

Les choix du signe initial ainsi que de la branche initiale de n_{eff} dans (47) restent soumis à des considérations physiques. Le choix du signe initial est donné par la condition physique de milieu passif : $\text{Im}(n) > 0$. Le choix de la branche initiale (choix de m initial) est fait à partir de la condition physique suivante : hors de toute résonance la perméabilité effective du matériau, extraite de l'indice effectif et de l'impédance effective, doit tendre vers 1. La **Procédure 2**, appelée `acos`, permettant de recoller de manière adéquate les branches à partir des valeurs de la FIGURE 44 est écrite ci-dessous. Elle est écrite en syntaxe Maple et utilise la procédure `arg`.

Procédure 2:

```
acos:= proc(a::list,branch,signe)
local i,c,e,b;
c:=arg(a)+[seq(2π·branch,i=1..nops(a))]:
b:=[ ];
for i from 1 by 1 to nops(a) do
e:=rhs(isolve({(l+1)·π>|c[i]|,l·π<|c[i]|})[1]);
b:=[op(b), signe·sign(evalf(c[i]))·((-1)^e·arccos(a[i])+2π·trunc(0.5+|e|/2))/(k[i]·d)]
end do;
```

```
b;
end proc;
```

Grâce à cette procédure, nous pouvons effectuer des simulations avec des structures de grandes épaisseurs, et ainsi, être plus proche de la simulation d'un métamatériau tri-dimensionnel dans lequel les effets de bords sont plus faibles.

Références

[1] E. Shamonina and L. Solymar, "Metamaterials : How the subject started," *Metamaterials*, vol. 1, no. 1, pp. 12–18, 2007.

[2] E. Wolf and M. Born, *Principles of optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 1999.

[3] J. Jackson, *Classical Electrodynamics, 3rd cd*. New York, John Willey & Sons, 1999.

[4] V. Veselago, "Electrodynamics of substances with simultaneously negative electrical and magnetic permeabilities," *Sov. Phys. Usp*, vol. 10, no. 4, pp. 509–514, 1968.

[5] J. Pendry, A. Holden, W. Stewart, and I. Youngs, "Extremely low frequency plasmons in metallic mesostructures," *Physical Review Letters*, vol. 76, no. 25, pp. 4773–4776, 1996.

[6] J. Pendry, A. Holden, D. Robbins, and W. Stewart, "Low frequency plasmons in thin-wire structures," *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 10, p. 4785, 1998.

[7] J. Pendry, A. Holden, D. Robbins, and W. Stewart, "Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena," *IEEE transactions on microwave theory and techniques*, vol. 47, no. 11, pp. 2075–2084, 1999.

[8] R. A. Shelby, D. R. Smith, and S. Schultz, "Experimental verification of a negative index of refraction.," *Science*, vol. 292, pp. 77–9, Apr. 2001.

[9] D. Smith, W. Padilla, D. Vier, S. Nemat-Nasser, and S. Schultz, "Composite medium with simultaneously negative permeability and permittivity," *Physical Review Letters*, vol. 84, no. 18, pp. 4184–4187, 2000.

[10] J. Pendry, "Negative refraction makes a perfect lens," *Physical Review Letters*, vol. 85, no. 18, pp. 3966–3969, 2000.

[11] D. R. Smith, J. B. Pendry, and M. C. K. Wiltshire, "Metamaterials and negative refractive index," *Science*, vol. 305, no. 5685, pp. 788 –792, 2004.

[12] F. Capolino, ed., *Metamaterials Handbook : Applications of Metamaterials*. CRC Press, 2009.

[13] N. Fang, H. Lee, C. Sun, and X. Zhang, "Sub-Diffraction-Limited optical imaging with a silver superlens," *Science*, vol. 308, pp. 534 –537, Apr. 2005.

[14] P. A. Belov, C. R. Simovski, and P. Ikonen, "Canalization of subwavelength images by electromagnetic crystals," *Phys. Rev. B*, vol. 71, p. 193105, May 2005.

[15] P. A. Belov and M. G. Silveirinha, "Resolution of subwavelength transmission devices formed by a wire medium," *Phys. Rev. E*, vol. 73, p. 056607, May 2006.

[16] C. R. Simovski, A. J. Viitanen, and S. A. Tretyakov, "Resonator mode in chains of silver spheres and its possible application," *Phys. Rev. E*, vol. 72, p. 066606, Dec 2005.

[17] A. Salandrino and N. Engheta, "Far-field subdiffraction optical microscopy using metamaterial crystals : Theory and simulations," *Phys. Rev. B*, vol. 74, p. 075103, Aug 2006.

[18] Z. Jacob, L. V. Alekseyev, and E. Narimanov, "Optical hyperlens : Far-field imaging beyond the diffraction limit," *Optics Express*, vol. 14, no. 18, pp. 8247–8256, 2006.

[19] Z. Liu, H. Lee, Y. Xiong, C. Sun, and X. Zhang, "Far-Field optical hyperlens magnifying Sub-Diffraction-Limited objects," *Science*, vol. 315, p. 1686, Mar. 2007.

[20] M. Notomi, "Theory of light propagation in strongly modulated photonic crystals : Refractionlike behavior in the vicinity of the photonic band gap," *Phys. Rev. B*, vol. 62, pp. 10696–10705, Oct 2000.

[21] C. Luo, S. Johnson, J. Joannopoulos, and J. Pendry, "All-angle negative refraction without negative effective index," *Physical Review B*, vol. 65, no. 20, p. 201104, 2002.

[22] J. Pendry, D. Schurig, and D. Smith, "Controlling electromagnetic fields," *Science*, vol. 312, no. 5781, p. 1780, 2006.

[23] D. Schurig, J. J. Mock, B. J. Justice, S. A. Cummer, J. B. Pendry, A. F. Starr, and D. R. Smith, "Metamaterial electromagnetic cloak at microwave frequencies," *Science*, vol. 314, pp. 977 –980, Nov. 2006.

[24] R. Marqués, F. Martín, and M. Sorolla, *Metamaterials with Negative Parameters : Theory, Design and Microwave Applications*. Wiley-Interscience, 1 ed., Jan. 2008.

[25] C. M. Soukoulis and M. Wegener, "Past achievements and future challenges in the development of three-dimensional photonic metamaterials," *Nat Photon*, vol. advance online publication, July 2011.

[26] J. Brown, "Artificial dielectrics having refractive indices less than unity," *Proceedings of the IEE-Part IV : Institution Monographs*, vol. 100, no. 5, pp. 51–62, 1953.

[27] W. Rotman, "Plasma simulation by artificial dielectrics and parallel-plate media," *Antennas and Propagation, IRE Transactions on*, vol. 10, no. 1, pp. 82–95, 1962.

[28] W. Hardy and L. Whitehead, "Split-ring resonator for use in magnetic resonance from 200–2000 MHz," *Review of Scientific Instruments*, vol. 52, no. 2, pp. 213–216, 1981.

[29] S. Linden, C. Enkrich, M. Wegener, J. Zhou, T. Koschny, and C. Soukoulis, "Magnetic response of metamaterials at 100 terahertz," *Science*, vol. 306, no. 5700, p. 1351, 2004.

[30] C. Enkrich, M. Wegener, S. Linden, S. Burger, L. Zschiedrich, F. Schmidt, J. Zhou, T. Koschny, and C. Soukoulis, "Magnetic metamaterials at telecommunication and visible frequencies," *Physical review letters*, vol. 95, no. 20, p. 203901, 2005.

[31] S. Zhang, W. Fan, B. Minhas, A. Frauenglass, K. Malloy, and S. Brueck, "Midinfrared resonant magnetic nanostructures exhibiting a negative permeability," *Physical review letters*, vol. 94, no. 3, p. 37402, 2005.

[32] J. D. Baena, L. Jelinek, R. Marqués, and J. Zehentner, "Electrically small isotropic three-dimensional magnetic resonators for metamaterial design," *Applied Physics Letters*, vol. 88, p. 134108, 2006.

[33] V. Shalaev, W. Cai, U. Chettiar, H. Yuan, A. Sarychev, V. Drachev, and A. Kildishev, "Negative index of refraction in optical metamaterials," *Optics Letters*, vol. 30, no. 24, p. 3356, 2005.

[34] G. Dolling, C. Enkrich, M. Wegener, C. Soukoulis, and S. Linden, "Low-loss negative-index metamaterial at telecommunication wavelengths," *Optics Letters*, vol. 31, no. 12, pp. 1800–1802, 2006.

[35] G. Dolling, M. Wegener, C. M. Soukoulis, and S. Linden, "Negative-index metamaterial at 780 nm wavelength," *Optics Letters*, vol. 32, pp. 53–55, Jan. 2007.

[36] J. Huangfu, L. Ran, H. Chen, X. Zhang, K. Chen, T. Grzegorczyk, and J. Kong, "Experimental confirmation of negative refractive index of a metamaterial composed of Ω-like metallic patterns," *Applied Physics Letters*, vol. 84, p. 1537, 2004.

[37] X. Zhou and X. Zhao, "Resonant condition of unitary dendritic structure with overlapping negative permittivity and permeability," *Applied Physics Letters*, vol. 91, no. 18, p. 181908, 2007.

[38] T. Koschny, L. Zhang, and C. M. Soukoulis, "Isotropic three-dimensional left-handed metamaterials," *Physical Review B*, vol. 71, p. 121103, Mar. 2005.

[39] V. Ponsinet, A. Aradian, P. Barois, and S. Ravaine, *Metamaterials Handbook : Applications of Metamaterials*, ch. 32. CRC Press, 2009.

[40] Q. Zhao, J. Zhou, F. Zhang, and D. Lippens, "Mie resonance-based dielectric metamaterials," *Materials Today*, vol. 12, no. 12, pp. 60–69, 2009.

[41] L. Lewin, "The electrical constants of a material loaded with spherical particles," *Electrical Engineers-Part III : Radio and Communication Engineering, Journal of the Institution of*, vol. 94, no. 27, pp. 65–68, 1947.

[42] S. O'Brien and J. Pendry, "Magnetic activity at infrared frequencies in structured metallic photonic crystals," *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 14, p. 6383, 2002.

[43] K. Huang, M. Povinelli, and J. Joannopoulos, "Negative effective permeability in polaritonic photonic crystals," *Applied Physics Letters*, vol. 85, no. 4, pp. 543–545, 2004.

[44] C. Holloway, E. Kuester, J. Baker-Jarvis, and P. Kabos, "A double negative (DNG) composite medium composed of magnetodielectric spherical particles embedded in a matrix," *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, vol. 51, no. 10, pp. 2596–2603, 2003.

[45] O. Vendik and M. Gashinova, "Artificial double negative (DNG) media composed by two different dielectric sphere lattices embedded in a dielectric matrix," in *Microwave Conference, 2004. 34th European*, vol. 3, pp. 1209–1212, IEEE, 2005.

[46] L. Jylhä, I. Kolmakov, S. Maslovski, and S. Tretyakov, "Modeling of isotropic backward-wave materials composed of resonant spheres 043102," *Journal of Applied Physics*, vol. 99, 2006.

[47] V. Yannopapas and A. Moroz, "Negative refractive index metamaterials from inherently non-magnetic materials for deep infrared to terahertz frequency ranges," *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 17, p. 3717, 2005.

[48] M. Wheeler, J. Aitchison, and M. Mojahedi, "Three-dimensional array of dielectric spheres with an isotropic negative permeability at infrared frequencies," *Physical Review B*, vol. 72, no. 19, p. 193103, 2005.

[49] M. Wheeler, J. Aitchison, and M. Mojahedi, "Coated nonmagnetic spheres with a negative index of refraction at infrared frequencies," *Physical Review B*, vol. 73, no. 4, p. 45105, 2006.

[50] J. Schuller, R. Zia, T. Taubner, and M. Brongersma, "Dielectric metamaterials based on electric and magnetic resonances of silicon carbide particles," *Physical review letters*, vol. 99, no. 10, p. 107401, 2007.

[51] T. Lepetit, E. Akmansoy, and J. Ganne, "Experimental evidence of resonant effective permittivity in a dielectric metamaterial," *Journal of Applied Physics*, vol. 109, p. 023115, 2011.

[52] Q. Zhao, L. Kang, B. Du, H. Zhao, Q. Xie, X. Huang, B. Li, J. Zhou, and L. Li, "Experimental demonstration of isotropic negative permeability in a three-dimensional dielectric composite," *Physical review letters*, vol. 101, no. 2, p. 27402, 2008.

[53] B.-I. Popa and S. A. Cummer, "Compact dielectric particles as a building block for low-loss magnetic metamaterials," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 100, p. 207401, May 2008.

[54] O. Acher, M. Ledieu, A. Bardaine, and F. Levassort, "Piezoelectric disks used as metamaterial inclusions," *Applied Physics Letters*, vol. 93, no. 3, p. 032501, 2008.

[55] M. Wheeler, J. Aitchison, J. Chen, G. Ozin, and M. Mojahedi, "Infrared magnetic response in a random silicon carbide micropowder," *Physical Review B*, vol. 79, no. 7, p. 73103, 2009.

[56] L. Peng, L. Ran, H. Chen, H. Zhang, J. Kong, and T. Grzegorczyk, "Experimental observation of left-handed behavior in an array of standard dielectric resonators," *Physical review letters*, vol. 98, no. 15, p. 157403, 2007.

[57] T. Ueda, A. Lai, and T. Itoh, "Demonstration of negative refraction in a cutoff Parallel-Plate waveguide loaded with 2-D square lattice of dielectric resonators," *Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on*, vol. 55, no. 6, pp. 1280–1287, 2007.

[58] T. Ueda, N. Michishita, M. Akiyama, and T. Itoh, "Dielectric-Resonator-Based composite Right/Left-Handed transmission lines and their application to leaky wave antenna," *Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on*, vol. 56, no. 10, pp. 2259–2269, 2008.

[59] T. Lepetit, E. Akmansoy, and J.-P. Ganne, "Experimental measurement of negative index in an all-dielectric metamaterial," *Applied Physics Letters*, vol. 95, no. 12, p. 121101, 2009.

[60] K. Shibuya, K. Takano, N. Matsumoto, K. Izumi, H. Miyazaki, Y. Jimba, and M. Hangyo, "Terahertz metamaterials composed of TiO_2 cube arrays," in *2nd International Congress on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics, Pamplona, Spain*, 2008.

[61] L. Brillouin, *Wave Propagation and Group Velocity*. Academic Press Inc., 1960.

[62] G. Dolling, C. Enkrich, M. Wegener, C. M. Soukoulis, and S. Linden, "Simultaneous negative phase and group velocity of light in a metamaterial," *Science*, vol. 312, pp. 892 –894, May 2006.

[63] N. W. Ashcroft and D. N. Mermin, *Solid State Physics*. Toronto : Thomson Learning, 1 ed., Jan. 1976.

[64] C. Bohren and D. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles*. New York, Wiley-Interscience, 1983.

[65] R. P. Feynman, R. B. Leighton, and M. Sands, *The Feynman Lectures on Physics, vol. 2*. Addison-Wesley, 1964.

[66] R. Clausius, "Die mechanische behandlung der electricität," *Braunschweig : Vieweg*, 1879.

[67] O. Mossotti, "Discussione analitica : sull'influenza che l'azione di un mezzo dielettrico ha sulla distribuzione dell'elettricita alla superficie di piu corpi elettrici disseminati in ess," *SPIE MILESTONE SERIES MS*, vol. 120, pp. 39–64, 1850.

[68] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*. John Wiley & Sons, 2005.

[69] D. Aspnes, "Local-field effects and effective-medium theory : A microscopic perspective," *American Journal of Physics*, vol. 50, p. 704, 1982.

[70] D. A. G. Bruggeman *Ann. Phys.*, vol. 24, p. 636, 1935.

[71] J. C. Maxwell-Garnett *Philos. Trans. R. Soc. London Ser. A*, vol. 203, p. 385, 1904.

[72] A. Sihvola, "Mixing rules with complex dielectric coefficients," *Subsurface Sensing Technologies and Applications*, vol. 1, no. 4, pp. 393–415, 2000.

[73] R. Ruppin, "Evaluation of extended Maxwell-Garnett theories," *Optics Communications*, vol. 182, no. 4-6, pp. 273–279, 2000.

[74] A. Sihvola, *Electromagnetic mixing formulas and applications*. IET, 1999.

[75] W. T. Doyle, "Optical properties of a suspension of metal spheres," *Phys. Rev. B*, vol. 39, pp. 9852–9858, May 1989.

[76] B. T. Draine, "The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains," *The Astrophysical Journal*, vol. 333, no. 2, pp. 848–872, 1988.

[77] S. Steshenko and F. Capolino, *Metamaterials Handbook : Applications of Metamaterials*, ch. 8. CRC Press, 2009.

[78] J. E. Sipe and J. V. Kranendonk, "Macroscopic electromagnetic theory of resonant dielectrics," *Physical Review A*, vol. 9, p. 1806, May 1974.

[79] S. Tretyakov, *Analytical Modeling in Applied Electromagnetics*. Artech House, June 2003.

[80] S. Y. Park and D. Stroud, "Surface-plasmon dispersion relations in chains of metallic nanoparticles : An exact quasistatic calculation," *Physical Review B*, vol. 69, p. 125418, Mar. 2004.

[81] P. Mallet, C. A. Guérin, and A. Sentenac, "Maxwell-garnett mixing rule in the presence of multiple scattering : Derivation and accuracy," *Phys. Rev. B*, vol. 72, p. 014205, Jul 2005.

[82] F. Claro and R. Rojas, "Correlation and multipolar effects in the dielectric response of particulate matter : An iterative mean-field theory," *Physical Review B*, vol. 43, p. 6369, Mar. 1991.

[83] L. Fu, P. B. Macedo, and L. Resca, "Analytic approach to the interfacial polarization of heterogeneous systems," *Physical Review B*, vol. 47, p. 13818, May 1993.

[84] L. Oyhénart, *Modélisation, réalisation et caractérisation de cristaux photoniques tridimensionnels en vue d'applications à la compabilité électromagnétique*. PhD thesis, Université de Bordeaux, Dec. 2005.

[85] J. E. Akin, *Finite Element Analysis for Undergraduates*. Academic Press, Feb. 1987.

[86] A. R. Mitchell and R. Wait, *Finite Element Method in Partial Differential Equations*. John Wiley & Sons Ltd, first edition ed., Jan. 1977.

[87] Ansoft corporation, *HFSS 10 User's guide*, 2005.

[88] A. M. Nicolson and G. F. Ross, "Measurement of the intrinsic properties of materials by Time-Domain techniques," *Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on*, vol. 19, no. 4, pp. 377–382, 1970.

[89] W. Weir, "Automatic measurement of complex dielectric constant and permeability at microwave frequencies," *Proceedings of the IEEE*, vol. 62, no. 1, pp. 33–36, 1974.

[90] D. R. Smith, S. Schultz, P. Markoš, and C. M. Soukoulis, "Determination of effective permittivity and permeability of metamaterials from reflection and transmission coefficients," *Phys. Rev. B*, vol. 65, p. 195104, Apr 2002.

[91] C. R. Simovski, "Material parameters of metamaterials (a review)," *Optics and Spectroscopy*, vol. 107, pp. 726–753, Dec. 2009.

[92] X. Chen, T. M. Grzegorczyk, B.-I. Wu, J. Pacheco, and J. A. Kong, "Robust method to retrieve the constitutive effective parameters of metamaterials," *Phys. Rev. E*, vol. 70, p. 016608, Jul 2004.

[93] A. D. Scher and E. F. Kuester, "Extracting the bulk effective parameters of a metamaterial via the scattering from a single planar array of particles," *Metamaterials*, vol. 3, pp. 44–55, Mar. 2009.

[94] C. R. Simovski, "Bloch material parameters of magneto-dielectric metamaterials and the concept of bloch lattices," *Metamaterials*, vol. 1, pp. 62–80, Dec. 2007.

[95] C. R. Simovski and S. A. Tretyakov, "Local constitutive parameters of metamaterials from an effective-medium perspective," *Physical Review B*, vol. 75, p. 195111, May 2007.

[96] M. Abramowitz and I. A. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*. New York : Dover, ninth dover printing, tenth gpo printing ed., 1964.

[97] J. Petzelt, T. Ostapchuk, A. Pashkin, and I. Rychetskı, "FIR and near-millimetre dielectric response of SrTiO3, BaTiO3 and BST films and ceramics," *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 23, no. 14, pp. 2627–2632, 2003.

[98] G. Houzet, K. Blary, S. Lepilliet, D. Lippens, L. Burgnies, G. Vélu, J. Carru, E. Nguéma, and P. Mounaix, "Dielectric dispersion of $BaSrTiO_3$ thin film from centimeter to submillimeter wavelengths," *Journal of Applied Physics*, vol. 109, p. 014116, 2011.

[99] K. S. Cole and R. H. Cole, "Dispersion and absorption in dielectrics i. alternating current characteristics," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 9, p. 341, 1941.

[100] V. Ferreira, J. Baptista, S. Kamba, and J. Petzelt, "Dielectric spectroscopy of $MgTiO_3$-based ceramics in the 109–1014Hz region," *Journal of Materials Science*, vol. 28, no. 21, pp. 5894–5900, 1993.

[101] E. D. Palik, *Handbook of optical constants of solids II*. Academic Press, Mar. 1991.

[102] D. A. H. Hanaor and C. C. Sorrell, "Review of the anatase to rutile phase transformation," *Journal of Materials Science*, vol. 46, pp. 855–874, Dec. 2010.

[103] C. Lee, P. Ghosez, and X. Gonze, "Lattice dynamics and dielectric properties of incipient ferroelectric TiO_2 rutile," *Physical Review B*, vol. 50, p. 13379, Nov. 1994.

[104] K. Berdel, J. Rivas, P. Bolivar, P. de Maagt, and H. Kurz, "Temperature dependence of the permittivity and loss tangent of high-permittivity materials at terahertz frequencies," *Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on*, vol. 53, no. 4, pp. 1266–1271, 2005.

[105] N. Matsumoto, T. Hosokura, K. Kageyama, H. Takagi, Y. Sakabe, and M. Hangyo, "Analysis of Dielectric Response of TiO_2 in Terahertz Frequency Region by General Harmonic Oscillator Model," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 47, no. 9, pp. 7725–7728, 2008.

[106] N. Matsumoto, T. Nakagawa, K. Kageyama, N. Wada, and Y. Sakabe, "Terahertz Band-Pass filter fabricated by multilayer ceramic technology," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 45, pp. 7499–7502, Sept. 2006.

[107] C. Kusko and M. Kusko, "Terahertz Effective Magnetic Activity in Microstructured TiO_2 ; A Numerical Study," in *Semiconductor Conference, 2007. CAS 2007. International*, vol. 1, pp. 181–184, IEEE, 2008.

[108] T. Koschny, P. Markoš, D. R. Smith, and C. M. Soukoulis, "Resonant and antiresonant frequency dependence of the effective parameters of metamaterials," *Physical Review E*, vol. 68, p. 065602, Dec. 2003.

[109] D. R. Smith, D. C. Vier, T. Koschny, and C. M. Soukoulis, "Electromagnetic parameter retrieval from inhomogeneous metamaterials," *Physical Review E*, vol. 71, p. 036617, Mar. 2005.

[110] M. Wheeler, J. Aitchison, and M. Mojahedi, "Coupled magnetic dipole resonances in sub-wavelength dielectric particle clusters," *JOSA B*, vol. 27, no. 5, pp. 1083–1091, 2010.

[111] A. Vallecchi and F. Capolino, *Metamaterials Handbook : Applications of Metamaterials*, ch. 19. CRC Press, 2009.

[112] A. A. Zharov, I. V. Shadrivov, and Y. S. Kivshar, "Suppression of left-handed properties in disordered metamaterials," *Journal of Applied Physics*, vol. 97, p. 113906, 2005.

[113] X. Zhao, Q. Zhao, L. Kang, J. Song, and Q. Fu, "Defect effect of split ring resonators in left-handed metamaterials," *Physics Letters A*, vol. 346, pp. 87–91, Oct. 2005.

[114] M. V. Gorkunov, S. A. Gredeskul, I. V. Shadrivov, and Y. S. Kivshar, "Effect of microscopic disorder on magnetic properties of metamaterials," *Physical Review E*, vol. 73, p. 056605, May 2006.

[115] J. Gollub, T. Hand, S. Sajuyigbe, S. Mendonca, S. Cummer, and D. R. Smith, "Characterizing the effects of disorder in metamaterial structures," *Applied Physics Letters*, vol. 91, p. 162907, 2007.

[116] I. B. Vendik, O. G. Vendik, and M. S. Gashinova, "Artificial dielectric medium possessing simultaneously negative permittivity and magnetic permeability," *Technical Physics Letters*, vol. 32, pp. 429–433, May 2006.

[117] I. Vendik, O. Vendik, I. Kolmakov, and M. Odit, "Modelling of isotropic double negative media for microwave applications," *Opto-Electronics Review*, vol. 14, pp. 179–186, Sept. 2006.

[118] I. B. Vendik, O. G. Vendik, and M. A. Odit, "An isotropic metamaterial formed with ferroelectric ceramic spherical inclusions," *Physics of the Solid State*, vol. 51, pp. 1590–1594, Aug. 2009.

[119] M. Odit, I. Vendik, and O. Vendik, "3D Isotropic metamaterial based on dielectric resonant spheres," in *Proceedings of Metamaterials 2007, Rome, Italy*, pp. 946–949, 2007.

[120] I. Vendik, M. Odit, and D. Kozlov, "3D isotropic metamaterial based on a regular array of resonant dielectric spherical inclusions," *Metamaterials*, vol. 3, no. 3-4, pp. 140–147, 2009.

[121] J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, J. N. Winn, and R. D. Meade, *Photonic Crystals : Molding the Flow of Light*. Princeton University Press, 2 ed., Feb. 2008.

[122] E. Shamonina, V. Kalinin, K. Ringhofer, and L. Solymar, "Magnetoinductive waves in one, two, and three dimensions," *Journal of Applied Physics*, vol. 92, p. 6252, 2002.

Theoretical study of metamaterials made of resonant dielectric particles in the submillimetric range : artificial magnetism and negative index of refraction

Abstract :
This PhD work was dedicated to the theoretical and numerical study of metamaterials in the terahertz range (or submillimetric) made of dielectric spheres embedded in a host medium. The dipolar electric and magnetic Mie resonances of a set of dielectric particles can provide metamaterials properties such as artificial magnetism or negative index of refraction.
In this work, the materials to use, as well as the sizes and the filling fractions of the spheres to achieve magnetism in the terahertz range were precised. As a second step, we interested in the size distribution effects on the effective permeability. We showed that this effect can be detrimental to the emergence of metamaterials properties, but nevertheless, in a controlled amount, polydispersity can generate a wide negative permeability zone with a magnitude close to zero. Finally, we studied the electromagnetic behaviour of bidisperse array of TiO_2 spheres with numerical simulations. A Bloch mode analysis of this kind of structure seems to proove the existence of a negative index band for high filling fractions.

Keywords : Electromagnetism, metamaterials, dielectrics, terahertz, modelling, effective medium, Mie resonances

Résumé :
Ce travail de thèse a été consacré à l'étude théorique et numérique de métamatériaux pour la gamme submillimétrique (domaine térahertz), formés de sphères diélectriques présentant des résonances dipolaires de Mie électrique et magnétique, dispersées dans un milieu-hôte.
Tout d'abord, les matériaux à utiliser ainsi que les tailles et fraction volumique des sphères permettant l'obtention d'effets de perméabilité ont été précisées. Ensuite, nous avons mené une étude de la polydispersité en taille et donné les distributions en taille limite à ne pas dépasser lors d'une synthèse chimique. Nous avons également montré qu'une polydispersité contrôlée pouvait engendrer un élargissement des zones de perméabilité négative ou une zone de perméabilité nulle. Enfin, nous avons étudié le comportement électromagnétique d'assemblages bidisperses de sphères de TiO_2 par simulations numériques, et avons procédé à une analyse des modes de Bloch, semblant indiquer l'existence d'une bande d'indice négatif pour des fractions volumiques élevées.

Mots clés : Électromagnétisme, métamatériaux, diélectrique, térahertz, modélisation, milieu effectif, résonances de Mie