



HAL
open science

De l'impact du désordre sur l'apparence visuelle de surfaces nanostructurées

Kevin Vynck, Gary Fourneau, Romain Pacanowski, Pascal Barla, Philippe Lalanne

► **To cite this version:**

Kevin Vynck, Gary Fourneau, Romain Pacanowski, Pascal Barla, Philippe Lalanne. De l'impact du désordre sur l'apparence visuelle de surfaces nanostructurées. *Photoniques*, 2024, 124, pp.34-38. 10.1051/photon/202412434 . hal-04487930v1

HAL Id: hal-04487930

<https://hal.science/hal-04487930v1>

Submitted on 4 Mar 2024 (v1), last revised 13 Mar 2024 (v2)

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

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



Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License

DE L'IMPACT DU DÉSORDRE SUR L'APPARENCE VISUELLE DE SURFACES NANOSTRUCTURÉES

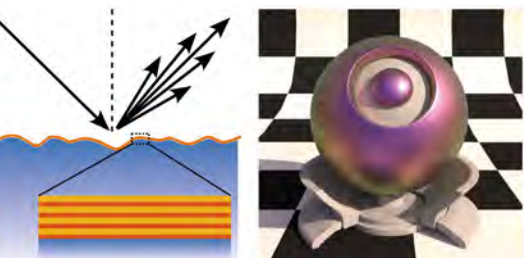
Kevin VYNCK^{1,*}, Gary FOURNEAU², Romain PACANOWSKI², Pascal BARLA², Philippe LALANNE³

¹ Institut Lumière Matière (iLM), Université Claude Bernard Lyon 1, CNRS, 69100 Villeurbanne, France

² Laboratoire Bordelais de Recherche en Informatique (LaBRI), Université de Bordeaux, CNRS, Bordeaux INP, INRIA, 33400 Talence, France

³ Laboratoire Photonique Numérique et Nanosciences (LP2N), Université de Bordeaux, Institut d'Optique Graduate School, CNRS, 33400 Talence, France

*kevin.vynck@univ-lyon1.fr



La compréhension des effets visuels créés par des nanostructures repose aujourd'hui largement sur des concepts acquis en optique des milieux stratifiés, périodiques et nano-objets résonants, négligeant souvent les irrégularités et les imperfections. En combinant modèles électromagnétiques et synthèse d'images, nous montrons ici que le désordre structural est essentiel à l'apparence visuelle d'un objet et que son ingénierie ouvre de nouvelles possibilités en termes de conception d'apparence.

<https://doi.org/10.1051/photon/202412434>

Article publié en accès libre sous les conditions définies par la licence Creative Commons Attribution License CC-BY (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0>), qui autorise sans restrictions l'utilisation, la diffusion, et la reproduction sur quelque support que ce soit, sous réserve de citation correcte de la publication originale.

La nature nous offre de magnifiques apparences visuelles. Les plus resplendissantes d'entre elles, de l'iridescence des opales et des ailes de certains papillons aux couleurs vives de certains oiseaux et de certains fruits, proviennent pour la plupart d'effets d'interférences créées par des nanostructures. Ces dernières décennies ont assisté à l'émergence de nouvelles thématiques de recherche multidisciplinaire, visant à comprendre l'origine microscopique des effets visuels produits dans la nature, à reproduire ces effets en

structurant artificiellement la matière, et à en créer de nouveaux. L'apparence visuelle des milieux nanostructurés est aujourd'hui un champ de recherche au spectre applicatif large, allant de l'étude fondamentale des interactions visuelles entre espèces biologiques à la conception de matériaux produisant des effets visuels inédits.

Dans ce cadre, la préoccupation principale de la communauté en photonique a porté sur la capacité de surfaces nanostructurées à créer une large palette de couleurs structurales. Deux familles de nanostructures présentent un intérêt particulier : (i) les

milieux stratifiés planaires, composés de matériaux diélectriques ou métalliques, isotropes ou anisotropes, et dont les propriétés optiques reposent sur des interférences de couches minces ; et (ii) les métasurfaces, à savoir, des nano-objets à fort indice de réfraction arrangés souvent périodiquement sur un substrat, qui exploitent en premier lieu les résonances photoniques ou plasmoniques des nano-objets. Aujourd'hui, la compréhension des effets colorés obtenus se base essentiellement sur des concepts qui supposent que les nanostructures sont ordonnées, parfaites.

Le désordre, que l'on caractérise par des variations aléatoires des paramètres structurels, est pourtant omniprésent dans les structures naturelles et s'avère essentiel à leur apparence visuelle à l'échelle macroscopique [1].

Les effets attendus du désordre sont, d'une part, d'élargir le pic de réflectance spéculaire et, d'autre part, de produire une composante diffuse dans l'intensité réfléchi ou transmise, se traduisant ainsi par un aspect trouble ou mat des surfaces. Ce comportement a été mis en évidence dans le cadre d'études sur la diffusion des ondes par des surfaces rugueuses aléatoires [2]. Cependant, peu de travaux se sont intéressés jusqu'à présent à l'interaction entre phénomènes cohérents et désordre dans les nanostructures. Il s'avère que les outils de modélisation en photonique sont souvent peu adaptés à l'étude de structures spatialement étendues et désordonnées. Ceci est d'autant plus regrettable que l'ingénierie du désordre a récemment montré un fort potentiel pour améliorer la fonctionnalité de certains composants photoniques (e.g., l'absorption de lumière dans les cellules photovoltaïques) [3]. La physique des ondes dans les milieux complexes pourrait ouvrir de nouvelles perspectives en conception de l'apparence visuelle.

L'apparence visuelle d'un objet est difficile à quantifier en pratique, car celle-ci dépend non seulement de la réponse optique complète (spectrale et angulaire) du matériau en réflexion et en transmission, mais également de la forme macroscopique de l'objet et de son environnement [4]. La synthèse d'images, lorsqu'elle repose sur des lois physiques de l'interaction lumière-matière, offre la possibilité de prédire l'impact de tel ou tel paramètre du matériau sur l'apparence visuelle d'un objet et d'étudier comment cette apparence varie avec l'environnement lumineux et les conditions d'observation [5].

Cet article montre, par le biais d'exemples concrets sur des milieux stratifiés et des metasurfaces, l'impact du désordre structurel sur l'apparence visuelle de surfaces nanostructurées.

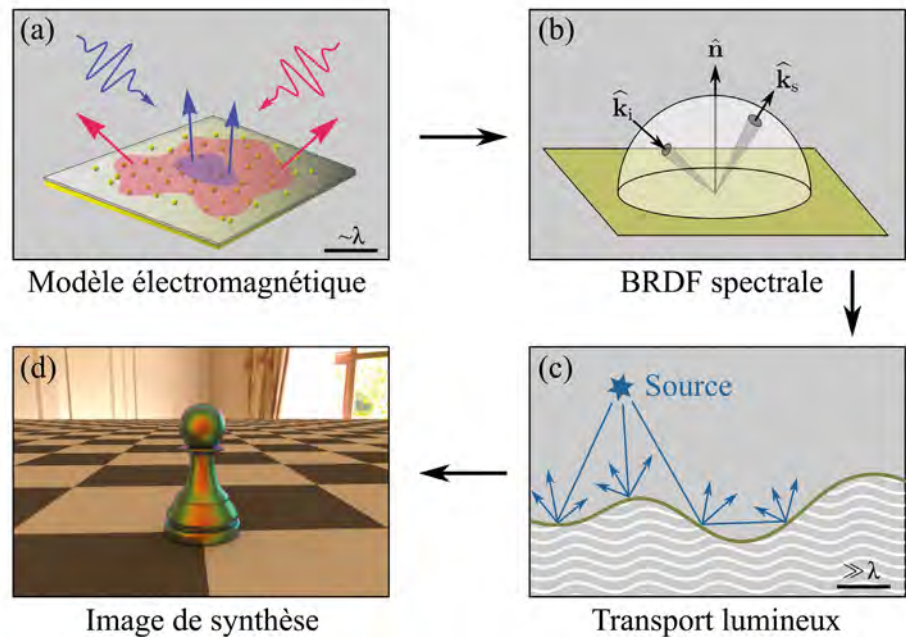


Figure 1. Illustration d'une approche directe pour la prédiction de l'apparence visuelle d'un objet macroscopique nanostructuré. Le problème est multi-échelle (la longueur d'onde est notée λ). (a) Un modèle électromagnétique est utilisé pour prédire les propriétés optiques d'une surface nanostructurée en prenant en compte les effets cohérents. (b) Une BRDF spectrale intégrant ces propriétés cohérentes pour la réflectance de la surface est définie, (c) puis utilisée dans un moteur de rendu spectral simulant le transport lumineux (incohérent) dans une scène virtuelle contenant l'objet macroscopique d'intérêt. (d) L'image de synthèse spectrale est convertie dans l'espace de couleur sRGB pour visualisation.

Modèles électromagnétiques et synthèse d'images sont combinés pour générer des rendus physico-réalistes d'objets macroscopiques nanostructurés en surface. La Fig. 1 illustre l'approche utilisée. La quantité radiométrique permettant de faire le lien entre les échelles microscopique et macroscopique est la fonction de distribution de la réflectivité bidirectionnelle (BRDF), une fonction multidimensionnelle qui décrit comment une surface redistribue angulairement une puissance incidente en réflexion. Pour des milieux désordonnés, la BRDF est obtenue par une moyenne statistique de la réponse électromagnétique du matériau [6].

MIROIRS DE BRAGG RUGUEUX

Les miroirs de Bragg sont des nanostructures qui présentent une modulation périodique de l'indice de réfraction dans une direction de

l'espace. Cette modulation périodique a pour conséquence d'ouvrir des bandes interdites photoniques dans le diagramme de dispersion. Dans des milieux composés de 2 matériaux d'indices de réfraction n_1 et n_2 et d'épaisseurs d_1 et d_2 , ceci se traduit par une réflectance forte autour de certaines longueurs d'onde λ_B (dites "de Bragg"), données par $m\lambda_B = 2(n_1d_1\cos\theta_1 + n_2d_2\cos\theta_2)$, où $m \in \mathbb{N}^*$ ($m = 1, 2, \dots$) est l'ordre de la bande interdite et θ_1 et θ_2 sont les angles de propagation dans les couches par rapport à la normale. On suppose généralement que les interfaces sont parfaitement planes et parallèles entre elles, mais il est commun dans la nature que celles-ci ne le soient pas.

Comme premier cas d'étude, nous considérons donc un miroir de Bragg dont la surface possède une rugosité aléatoire, décrite par une hauteur h qui fluctue dans le plan [Fig. 2(a)]. ●●●

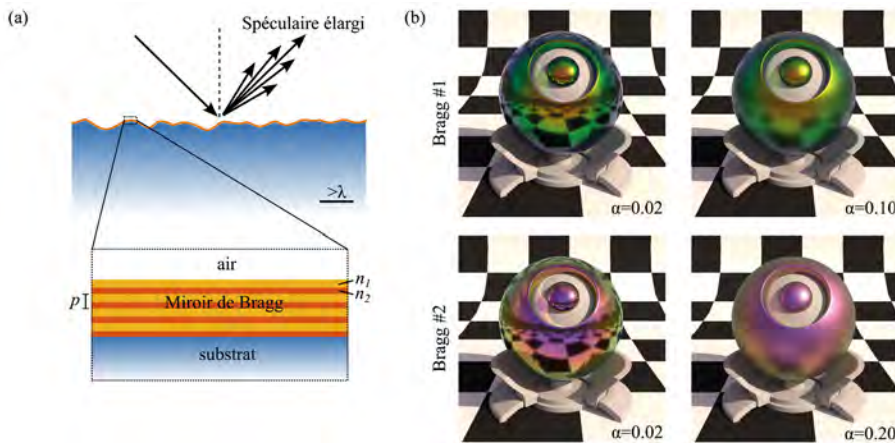


Figure 2. Impact d'une rugosité aléatoire sur l'apparence visuelle d'un miroir de Bragg. (a) Schéma simplifié de la structure considérée. La rugosité tend à élargir angulairement le pic de réflexion spéculaire. (b) Rendus prédictifs de l'apparence visuelle d'un objet sphérique, dont la surface est un miroir de Bragg rugueux de périodes (de périodicité $p = d_1 + d_2$) sur un substrat absorbant, en fonction du niveau de rugosité $\alpha \in [0, 1]$. L'environnement lumineux de l'objet est une scène extérieure en plein jour par temps clair (lumière directive). Les indices de réfraction et épaisseurs des couches sont, respectivement, $n_1 = 1,6$ et $n_2 = 1,5$, $d_1 = 93$ nm et $d_2 = 100$ nm pour le Bragg #1 (ligne du haut), et $n_1 = 1,4$ et $n_2 = 2,0$, $d_1 = d_2 = 200$ nm pour le Bragg #2 (ligne du bas).

Nous supposons que l'amplitude des variations de h est très inférieure à la distance d'auto-corrélation de h (approximation des faibles pentes), et que cette dernière est elle-même bien plus grande que la longueur d'onde. L'effet principal d'une telle rugosité est facile à intuitiver : à mesure que l'amplitude des fluctuations de la normale à la surface augmente, le pic de réflexion spéculaire, qui est une fonction δ de Dirac en l'absence de toute rugosité, s'élargit angulairement. Qu'en est-il donc de l'apparence visuelle de miroirs de Bragg rugueux ?

Faisons appel à la synthèse d'images pour répondre à cette question. Dans le cadre de l'approximation des faibles pentes, localement, les interfaces du miroir de Bragg restent parallèles entre elles et les épaisseurs des différentes couches invariées ; seule la normale à la surface subit une variation aléatoire, que l'on distribuera selon une distribution dite de Trowbridge-Reitz (GGX) dont la largeur est décrite par un paramètre de rugosité $\alpha \in [0, 1]$. Dans sa forme la plus élémentaire, qui néglige les inter-réflexions entre

différentes parties de la surface rugueuse, la théorie des microfacettes fournit une expression analytique de la BRDF [5]

$$f_r^{(\text{Bragg})}(\hat{\mathbf{k}}_s, \hat{\mathbf{k}}_i) = \frac{R(\hat{\mathbf{k}}_s, \hat{\mathbf{k}}_i)G(\hat{\mathbf{k}}_s, \hat{\mathbf{k}}_i)D(\hat{\mathbf{k}}_s, \hat{\mathbf{k}}_i)}{4\cos\theta_s\cos\theta_i}$$

où R est le terme de réflectance de la surface plane, G décrit un phénomène d'ombrage dû à la géométrie et D décrit la distribution des normales $\hat{\mathbf{n}}$ de la surface rugueuse. $\hat{\mathbf{k}}_s$ et $\hat{\mathbf{k}}_i$ sont respectivement les vecteurs d'onde unitaires pour les ondes incidente et diffusée, voir la Fig. 1(b), et la dépendance en longueur d'onde (ou fréquence) est implicite. Dans l'Eq. (1), les effets d'interférences de couches minces sont pris en compte directement dans la fonction R , qui peut être évaluée avec une méthode matricielle classique. Des images de synthèses spectrales sont obtenues par un algorithme Monte Carlo simulant les trajectoires de rayons lumineux à chaque longueur d'onde, puis sont converties dans l'espace de couleur sRGB pour visualisation.

Les rendus sont donnés en Fig. 2(b) pour un même objet sphérique placé

dans un environnement lumineux permettant d'apprécier distinctement les effets d'interférences de couches minces et l'effet de la rugosité, et ce dans plusieurs cas. On modélise deux miroirs de Bragg à faible et fort contraste d'indice de réfraction, d'épaisseur finie, sur un substrat absorbant, et pour différents niveaux de rugosité. Du fait des différents paramètres de structure, les couleurs structurales produites par les miroirs de Bragg sont très distinctes et leur variation angulaire (appréciable en observant les différentes parties de l'objet courbé) est loin d'être triviale. Tout d'abord, la rugosité produit l'effet de flou attendu ; l'environnement de l'objet observé en réflexion spéculaire sur celui-ci est de plus en plus difficile à percevoir à mesure que la rugosité augmente. Plus intéressant, la rugosité affecte le nombre de franges de couleur ainsi que leur saturation, agissant comme un filtre passe-bas qui rend la réponse de l'objet moins sensible à l'angle d'incidence. Nous montrons ainsi que la rugosité de surface, même de faible amplitude, a un impact significatif sur l'apparence visuelle d'un objet et devrait être pris en compte dans les études sur le sujet.

MÉTASURFACES DÉSORDONNÉES

Les métasurfaces sont traditionnellement des arrangements planaires et ordonnés de nano-objets à fort indice de réfraction. Leurs propriétés optiques reposent souvent sur les résonances (photoniques, plasmoniques) de nano-objets individuels, qui produisent des réponses généralement piquées spectralement et angulairement, conduisant ainsi naturellement à des couleurs structurales en réflexion et transmission. Les résonances sont modifiées par l'interaction électromagnétique entre nano-objets voisins. Dans le cas de structures périodiques avec des cellules élémentaires simples (comptant un ou quelques nano-objets), des calculs numériques avec des outils classiques en nanophotonique

(RCWA, FDTD, etc.) peuvent être menés sans difficulté majeure pour prédire ces mêmes spectres.

Le cas d'ensembles désordonnés de nano-objets résonants dans un milieu planaire [Fig. 3(a)] est bien plus difficile à traiter par des simulations rigoureuses et la réponse optique de telles surfaces est plus difficile à intuitiver en raison du processus de diffusion multiple entre nano-objets [3]. Comme nous le verrons ci-dessous, un arrangement planaire désordonné de nano-objets se traduit par l'émergence d'une réponse optique diffuse significative, au comportement spectral et angulaire très différent de la réponse observée pour un empilement de couches minces rugueuses.

Le point essentiel pour aborder le problème est le développement d'un modèle théorique de BRDF pour des métasurfaces désordonnées. Nous utilisons ici un modèle approché développé dans [7], qui s'avère toutefois suffisamment précis pour obtenir une prédiction fiable de l'apparence visuelle d'objets macroscopiques nanostructurés. Dans le modèle, l'intensité diffusée par une métasurface est séparée en deux contributions distinctes : une contribution spéculaire avec une réponse angulaire décrite

par une distribution de Dirac, et une contribution diffuse avec une réponse angulaire couvrant l'hémisphère en réflexion. Cette dernière peut s'écrire

$$f_{r,diff}^{(metasurface)}(\hat{\mathbf{k}}_s, \hat{\mathbf{k}}_i) = \rho \frac{d\sigma_s^{(1)}}{d\Omega}(\hat{\mathbf{k}}_s, \hat{\mathbf{k}}_i) \times S(\hat{\mathbf{k}}_s, \hat{\mathbf{k}}_i) \frac{C(\hat{\mathbf{k}}_s, \hat{\mathbf{k}}_i)}{\cos\theta_s \cos\theta_i}$$

où ρ est la densité surfacique de nano-objets (en μm^{-2}), $d\sigma_s^{(1)}/d\Omega$ est la section efficace différentielle de diffusion d'un nano-objet individuel, S est le facteur de structure statique, qui décrit l'effet des corrélations spatiales entre paires de nano-objets sur la diffusion, et C est un facteur lié à l'interaction électromagnétique entre nano-objets. La force d'un tel modèle approché vient du fait qu'il sépare explicitement les contributions des nano-objets individuels (via $d\sigma_s^{(1)}/d\Omega$) et d'un désordre possiblement corrélé (via S), facilitant grandement la compréhension physique.

Des rendus pour le même objet sphérique dans le même environnement sont générés pour des arrangements désordonnés de particules sphériques sur un substrat de verre absorbant. On considère, en Fig. 3(b), des particules de silicium (Si) pour deux rayons, $r = 60$ nm et $r = 90$ nm, et sans contrôle de la

corrélacion structurelle, et en Fig. 3(c), des particules d'argent (Ag) à un rayon fixe mais avec un contrôle de la corrélacion structurelle.

Notons tout d'abord que l'image de l'environnement observée en réflexion spéculaire est nette, contrairement au cas des miroirs de Bragg rugueux, en raison du caractère angulairement piqué (distribution de Dirac) du terme spéculaire. L'effet principal du désordre est d'ajouter à la composante spéculaire une composante diffuse, qui se traduit, dans le cas des métasurfaces de la Fig. 3(b), par une coloration de fond de l'objet. On observe également que la couleur de la composante spéculaire diffère sensiblement de la couleur de la composante diffuse. Cela est dû au fait que la monocouche de particules se comporte comme une couche effective homogène pour la composante spéculaire, donnant lieu à des interférences de couches minces, alors que la composante diffuse est essentiellement donnée par la réponse optique d'une particule (via $d\sigma_s^{(1)}/d\Omega$). La variation de la couleur diffuse avec la taille des particules s'explique par le décalage en fréquence des résonances (de Mie) des particules individuelles.

SPECTROGON

State of the art products

Filtres Interférentiels

De 200 à 15000 nm

- Passe-bande
- Passe-haut
- Passe-bas
- Large bande
- Densité neutre
- Disponible en stock



Réseaux Holographiques

De 150 à 2000 nm

- Compression d'impulsion
- Télécom
- Accordabilité spectrale
- Monochromateurs
- Spectroscopie
- Disponible en stock



UK (parle français): sales.uk@spectrogon.com • Tel +44 1592770000

Sweden (headquarters): sales.se@spectrogon.com • Tel +46 86382800

US: sales.us@spectrogon.com • Tel +1 9733311191

www.spectrogon.com

Pour les métasurfaces de la Fig. 3(c), la résonance (plasmonique) des particules d'argent est spectralement large. Cela produit une couleur diffuse grisâtre. Toutefois, un contrôle de la corrélation structurale à courte portée, obtenue en définissant une distance minimale de séparation des particules entre elles, produit un effet spectaculaire sur la composante diffuse. Dû aux corrélations structurales, cette dernière est fortement diminuée pour des angles d'observation proches de la direction spéculaire, et amplifiée à des angles plus élevés. La position angulaire de ce lobe de diffusion dépend de la longueur d'onde, ce qui conduit à un dégradé « arc-en-ciel » autour du spéculaire. Plus impressionnant encore, la zone sombre entourée d'un halo diffus coloré suit, sur l'objet, la position de la source lumineuse en réflexion spéculaire. Cet effet, prédit théoriquement et démontré expérimentalement dans [7], illustre parfaitement le potentiel d'une ingénierie du désordre pour créer des apparences visuelles nouvelles.

CONCLUSION

Évaluer l'impact du désordre dans les surfaces nanostructurées sur leur apparence visuelle à l'échelle macroscopique est essentiel tant pour comprendre la fonctionnalité des structures photoniques naturelles dans la faune et la flore que pour réaliser des matériaux produisant de nouveaux effets visuels. Le rendu prédictif, basé sur une description électromagnétique de l'interaction lumière-matière, s'avère être un outil précieux pour investiguer cette problématique. Nous avons présenté ici de premiers cas d'études montrant l'effet de deux types de désordre distincts – (i) une rugosité de surface avec une corrélation latérale très supérieure à la longueur d'onde et (ii) un ensemble désordonné de particules résonantes déposées sur une surface plane avec un désordre corrélé – sur leur apparence visuelle. Une telle méthodologie pourrait être développée pour

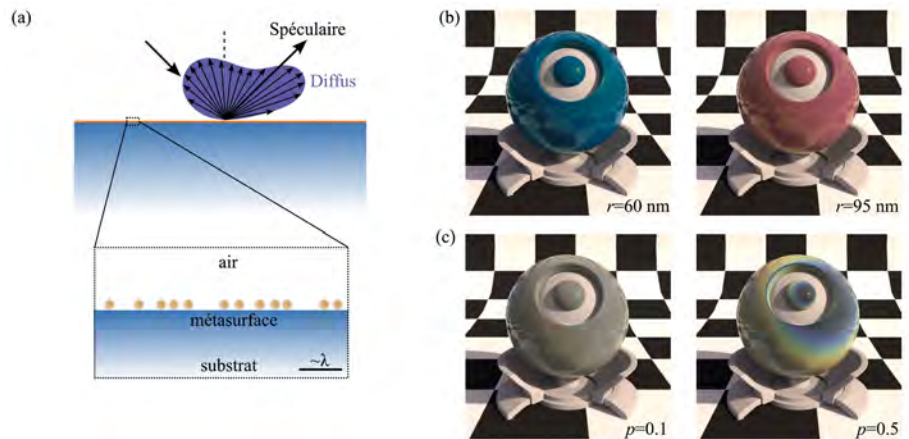


Figure 3. Impact du désordre sur l'arrangement des nano-objets résonants sur l'apparence visuelle des métasurfaces. (a) Schéma simplifié de la structure considérée. L'intensité réfléchie peut être décomposée en une composante spéculaire et une composante diffuse. (b)-(c) Rendus prédictifs de l'apparence visuelle d'un objet sphérique dont la surface est une métasurface désordonnée, consistant en un ensemble désordonné de particules sphériques sur un substrat de verre absorbant. L'environnement lumineux de l'objet est le même que dans la Fig. 2. La métasurface en (b) est composée de particules de Silicium de rayon r que l'on fait varier, déposées à un taux de recouvrement surfacique $f = 0,10$ avec un degré de corrélation structurale $p = 0,1$. La métasurface en (c) est composée de particules d'argent de rayon $r = 90$ nm déposées à un taux de recouvrement surfacique $f = 0,10$ et avec un degré de corrélation structurale p que l'on fait varier.

traiter d'autres cas de grand intérêt aujourd'hui, tels que les structures désordonnées corrélées observées chez certains oiseaux et insectes, ou encore les matériaux cholestériques à base de cellulose. Une compréhension solide du lien étroit entre nanostructuration et apparence visuelle pourrait permettre, à terme, de considérer des

problèmes de conception inverse, à savoir déterminer une nanostructuration permettant d'obtenir une apparence visuelle désirée. Cette voie, dans laquelle nous nous engageons, nécessitera cependant l'élaboration de modèles de BRDF plus intuitifs et qui dépendent de moins de paramètres que ceux présentés ici [3]. ●

RÉFÉRENCES

- [1] S. Kinoshita, S. Yoshioka, *Chem. Phys. Chem.* **6**, 1442 (2005).
- [2] P. Beckmann, A. Spizzichino, *The scattering of electromagnetic waves from rough surfaces* (Norwood, 1987).
- [3] P. Lalanne *et al.*, arXiv preprint, arXiv:2310.14349 (2023).
- [4] P. Boulenguez, L. Simonot, S. Carré, Apparence visuelle : quelques clés pour comprendre, in *Quand la matière diffuse la lumière*, eds. L. Simonot, P. Boulenguez (Presses des Mines, 2019).
- [5] M. Pharr, W. Jakob, G. Humphreys. *Physically based rendering: from theory to implementation*, 4th ed. (MIT Press, 2023).
- [6] P. Chavel *et al.*, *J. Phys.: Conf. Ser.* **2149**, 012013 (2022).
- [7] K. Vynck *et al.*, *Nat. Mater.* **21**, 1035 (2022)