



**HAL**  
open science

# Atomes et Nanostructures: Dispositif de lithographie atomique et Réponse Optique d'ouvertures sub-longueur d'onde

Guillaume Gay

► **To cite this version:**

Guillaume Gay. Atomes et Nanostructures: Dispositif de lithographie atomique et Réponse Optique d'ouvertures sub-longueur d'onde. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2006. Français. NNT: . tel-00154594

**HAL Id: tel-00154594**

**<https://theses.hal.science/tel-00154594>**

Submitted on 14 Jun 2007

**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.

# Atomes et nanostructures : Dispositif de lithographie atomique et Réponse optique d'ouvertures sub-longueur d'onde

## THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 23 juin 2006

pour l'obtention du

**Doctorat de l'Université Paul Sabatier**  
(spécialité physique atomique et moléculaire)

par

Guillaume Gay

### Composition du jury

*Rapporteurs* : M. Philippe Lalanne  
M. Gérard Dujardin

*Examineurs* : M. Christian Joachim  
M. Henri Lezec  
M. John Weiner

Mis en page avec la classe ThUps.

## Remerciements

Ce travail de thèse a grandement bénéficié pendant les deux premières années de la présence de Bruno Viaris. Ses connaissances encyclopédiques et sa facilité à trouver des solutions élégantes aux problèmes de tous ordres ont fait avancer les expériences à grands pas. Son ombre plane sur la plus grande partie des dispositifs de mesure que nous présenterons ici. Les expériences de lithographie proprement dites ont été magistralement menées par Colm O'Dwyer, qui a réussi à parcourir l'Europe pour caractériser les surfaces par différentes méthodes de microscopie tout en passant des heures devant un microscope à force atomique, en quête des trous nanométriques dispersés sur un échantillon. Cette thèse est aussi redevable des conseils et des coups de mains quotidiens d'Olivier Alloschery, en particulier pour la réalisation du goniomètre employé dans les études optiques, et en général pour de très nombreux aspects de ce travail. Dans toutes ces expériences, Renaud Mathevet a fabriqué et souvent conçu la grande majorité des éléments de mécanique et d'électronique. Il a aussi mené la plupart des simulations numériques que l'on trouvera dans la première partie de ce manuscrit. Sa participation a donc été primordiale. Mais Renaud a surtout représenté au cours de cette thèse une référence scientifique essentielle et un interlocuteur exigeant, rigoureux... et patient.

Toutes les structures sub-longueur d'onde étudiées ont été réalisées par Henri Lezec à Strasbourg, dans l'équipe de T.W. Ebbesen puis à Caltech, où il est accueilli par H. Atwater. Leur conception doit énormément à sa connaissance exhaustive de ces objets. Sans lui, la moitié des pages de ce document seraient blanches.

Enfin, John Weiner a été le moteur de ces recherches, leur initiateur, et leur coordinateur. Sa passion pour la physique et son énergie inépuisable ont permis que ces expériences se déroulent dans les meilleures conditions. Ces travaux doivent beaucoup aux discussions fréquentes que nous avons pu avoir, à sa disponibilité et à son implication entière dans la recherche.

Je souhaiterais aussi remercier Jacques Vigué, qui m'a accueilli au LCAR, et exprimer toute ma gratitude à Bertrand Girard et Eric Suraud, qui ont permis que les derniers mois de cette thèse soient soutenus par un financement de vacataire de recherche de l'IRSAMC. Il me faut aussi saluer la patience et la gentillesse de Marie-France Rolland et Agnès Georges, et l'accueil chaleureux de tous les membres du laboratoire.

Je remercie enfin sincèrement Christian Joachim et Henri Lezec, qui ont accepté de faire partie du jury de cette thèse, et Gérard Dujardin et Philippe Lalanne, qui ont bien voulu relire et commenter ce manuscrit.



*À mes grands parents*



# Table des matières

Avant propos

xv

---

---

## Partie I Lithographie atomique

---

---

1

### Introduction

3

### Chapitre 1 Interactions du césium avec la lumière

7

- 1.1 Introduction . . . . . 7
- 1.2 Absorption et émission de radiation . . . . . 7
  - 1.2.1 Pompage optique . . . . . 8
  - 1.2.2 Absorption saturée . . . . . 10
- 1.3 Forces radiatives . . . . . 12
  - 1.3.1 Pression de radiation et refroidissement Doppler . . . . . 13
  - 1.3.2 Force dipolaire . . . . . 16
- 1.4 Conclusion . . . . . 18

### Chapitre 2 Vue d'ensemble du dispositif expérimental

21

- 2.1 Système de vide . . . . . 21
  - 2.1.1 Pompage . . . . . 21
  - 2.1.2 Étuvage . . . . . 23
  - 2.1.3 Mesure et diagnostic . . . . . 23

2.2	Source de césium . . . . .	24
2.2.1	Chauffage . . . . .	24
2.2.2	Effet du tube de sortie . . . . .	25
2.2.3	Après le diaphragme . . . . .	30
2.3	Système laser, asservissements . . . . .	30
2.3.1	Lasers utilisés . . . . .	31
2.3.2	Asservissement . . . . .	32
2.3.3	Détection . . . . .	34
2.4	Mélasse optique . . . . .	35
2.4.1	Optique . . . . .	35
2.4.2	Champ magnétique . . . . .	37
2.4.3	Conclusion . . . . .	38
<b>Chapitre 3 Caractérisation du jet et de la mélasse optique</b>		<b>39</b>
3.1	Introduction . . . . .	39
3.2	Jet non refroidi . . . . .	39
3.2.1	Distribution de vitesse – Analyse Doppler . . . . .	41
3.2.2	Flux . . . . .	44
3.3	Jet refroidi . . . . .	48
3.3.1	Image de fluorescence . . . . .	48
3.3.2	Divergence . . . . .	50
3.3.3	Gain . . . . .	51
3.3.4	Effets de la température de la source . . . . .	51
3.3.5	Distribution de vitesse . . . . .	52
3.3.6	Désaccord et puissance optimaux . . . . .	55
3.3.7	Résumé des caractéristiques du jet refroidi pour $T_F = 95^\circ\text{C}$ . . . . .	58
3.3.8	Améliorations possibles . . . . .	59
<b>Chapitre 4 Nano-lithographie atomique de l’or</b>		<b>61</b>
4.1	Introduction . . . . .	61
4.2	Les monocouches moléculaires auto-assemblées . . . . .	61
4.2.1	Le substrat . . . . .	62
4.2.2	Dépôt de la résine . . . . .	63
4.3	Lithographie d’une surface d’or . . . . .	66
4.3.1	Exposition au césium . . . . .	66

---

4.3.2	Gravure chimique . . . . .	70
4.4	Masques nanométriques . . . . .	71
4.4.1	Réseau de trous . . . . .	73
4.4.2	Masques pyramidaux . . . . .	75
4.5	Conclusion . . . . .	79

---



---

## Partie II Réponse optique d'ouvertures sub-longueur d'onde

---

<b>Introduction</b>	<b>83</b>	
<b>Chapitre 1 Transmission de la lumière par des structures sub-longueur d'onde</b>	<b>85</b>	
1.1	Processus élémentaires . . . . .	86
1.1.1	Champ électromagnétique à une interface métal/diélectrique . . . . .	86
1.1.2	Diffraction par une fente sub-longueur d'onde . . . . .	92
1.1.3	Transmission par un trou de section circulaire . . . . .	101
1.1.4	Transmission par un trou de section elliptique . . . . .	102
1.1.5	Conclusion . . . . .	102
1.2	Transmission par des motifs périodiques . . . . .	103
1.2.1	Définitions . . . . .	103
1.2.2	Premiers modèles . . . . .	104
1.2.3	Profils de Fano . . . . .	107
1.2.4	Conclusion . . . . .	111
1.3	Ouvertures décorées . . . . .	112
1.3.1	Effet de collimation . . . . .	112
1.3.2	Doublets . . . . .	114
1.4	Exemples d'applications . . . . .	116
1.4.1	Optique des plasmons de surface . . . . .	116
1.4.2	Exaltation de la fluorescence . . . . .	116
1.5	Conclusion . . . . .	117

<b>Chapitre 2 Imagerie par microscopie de fluorescence</b>	<b>119</b>
2.1 Introduction . . . . .	119
2.2 Dispositif expérimental . . . . .	120
2.2.1 Description générale du dispositif d'imagerie . . . . .	120
2.2.2 Caractéristiques des éléments optiques . . . . .	122
2.2.3 Caractéristiques du jet . . . . .	123
2.3 Imagerie, aberrations . . . . .	123
2.3.1 Flou cinétique . . . . .	124
2.3.2 Saturation . . . . .	124
2.3.3 Effet Doppler . . . . .	124
2.4 Imagerie de champs issus de structures sub-longueur d'onde . . . . .	127
2.4.1 Échantillons étudiés . . . . .	127
2.4.2 Images . . . . .	127
2.4.3 Traitement des données . . . . .	128
2.4.4 Comparaison des mesures optiques et atomiques de la divergence . . . . .	130
2.5 Conclusion . . . . .	132
<b>Chapitre 3 Ouvertures décorées par des motifs périodiques</b>	<b>135</b>
3.1 Dispositifs de mesure . . . . .	136
3.1.1 Mesure de l'intensité transmise . . . . .	136
3.1.2 Mesure de la distribution angulaire . . . . .	137
3.1.3 Étalonnage . . . . .	138
3.1.4 Reproductibilité . . . . .	139
3.1.5 Alignements . . . . .	140
3.2 Œuil de bœuf . . . . .	140
3.2.1 Une face – distribution angulaire d'intensité . . . . .	143
3.2.2 Structures à une face – Taux de transmission . . . . .	143
3.2.3 Structures à deux faces – distribution angulaire d'intensité . . . . .	145
3.2.4 Structures à deux faces – Taux de transmission . . . . .	145
3.3 Fentes entourées de sillons périodiques . . . . .	146
3.3.1 Introduction . . . . .	146
3.3.2 Décorations en face d'entrée . . . . .	147
3.3.3 Face de sortie . . . . .	149
3.3.4 Conclusion . . . . .	154

---

<b>Chapitre 4 Ouvertures décorées par des motifs uniques</b>	<b>155</b>
4.1 Introduction . . . . .	155
4.2 Échantillons étudiés . . . . .	156
4.3 Expression des figures d'interférences . . . . .	157
4.3.1 Définitions . . . . .	157
4.3.2 hypothèses . . . . .	159
4.3.3 Sillon en face d'entrée . . . . .	159
4.3.4 Sillons en face de sortie . . . . .	160
4.4 Franges d'interférence en face d'entrée . . . . .	162
4.4.1 Méthode de mesure de l'intensité transmise pour les structures linéaires	162
4.4.2 Mesures . . . . .	163
4.5 Figures d'interférence en face de sortie . . . . .	166
4.5.1 Fentes nues et normalisation . . . . .	166
4.5.2 Amplitude, phase et nombre d'onde effectifs de l'onde de surface . . .	167
4.5.3 Effets de la géométrie du diffuseur . . . . .	173
4.5.4 Asymétrie du diagramme d'émission . . . . .	175
4.6 Conclusion . . . . .	178
<b>Conclusion générale</b>	<b>181</b>
<b>Annexes</b>	<b>185</b>
<b>Annexe A Modulation de la densité atomique par masque optique</b>	<b>185</b>
A.1 Introduction . . . . .	185
A.2 Focalisation par onde stationnaire . . . . .	186
A.2.1 Lentille optique . . . . .	186
A.2.2 Aberrations . . . . .	189
A.3 Réseau de lentilles macroscopiques . . . . .	189
A.3.1 Dispositif . . . . .	190
A.3.2 Résultats . . . . .	192
A.4 Détection par démodulation . . . . .	195
A.4.1 Dispositif expérimental . . . . .	196
A.4.2 Résultats . . . . .	196
A.5 Perspectives . . . . .	201
A.5.1 Gamme de paramètres . . . . .	201

A.5.2	Démodulation au premier ordre . . . . .	201
A.5.3	Méthodes plus avancées . . . . .	201
A.5.4	Conclusion . . . . .	202
<b>Annexe B</b>	<b>Asservissement des lasers</b>	<b>203</b>
B.1	Démodulateur . . . . .	203
B.2	Correcteur . . . . .	205
B.3	Balayage . . . . .	207
<b>Annexe C</b>	<b>Jet</b>	<b>209</b>
C.1	Contrôle de température du four . . . . .	209
<b>Annexe D</b>	<b>Quelques données sur l'atome de césium</b>	<b>211</b>
D.1	Grandeurs fondamentales . . . . .	211
D.2	Structure électronique . . . . .	212
D.3	Spectres d'absorption saturée . . . . .	213
D.4	Diagramme de phases . . . . .	214
<b>Bibliographie</b>		<b>215</b>

# Table des figures

1.1	Paramètre de saturation en fonction du désaccord. . . . .	9
1.2	Schéma de principe d'une mesure d'absorption saturée. . . . .	11
1.3	Spectre d'absorption saturée simulé pour un atome à deux niveaux. . . . .	11
1.4	Spectre d'absorption saturée mesuré pour la transition $F = 3 \rightarrow F = 4$ . . . . .	12
1.5	Force dissipative en fonction de la vitesse d'un atome . . . . .	14
2.1	Système de pompage du dispositif expérimental . . . . .	22
2.2	Vue générale du jet atomique non-refroidi . . . . .	24
2.3	Géométrie et trajectoires limites à travers le diaphragme D . . . . .	26
2.4	Profil angulaire théorique à la sortie du four . . . . .	28
2.5	Fraction du jet comprise dans un cône d'angle $\vartheta$ . . . . .	29
2.6	Distribution d'intensité après le diaphragme. . . . .	30
2.7	Photo de la diode de refroidissement en cavité étendue . . . . .	32
2.8	Image du dispositif de spectroscopie par absorption saturée de la diode de refroidissement. . . . .	33
2.9	Schéma de principe de l'asservissement . . . . .	34
2.10	Dispositif détaillé de la mélasse optique . . . . .	36
2.11	Schéma de la région d'interaction . . . . .	37
3.1	Schéma des différentes parties du dispositif . . . . .	40
3.2	Exemple d'image de fluorescence, jet non-refroidi. . . . .	40
3.3	Coupes du jet non-refroidi . . . . .	41
3.4	Dispositif de caractérisation de la distribution de vitesse . . . . .	42
3.5	Distribution longitudinale de vitesse du jet non-refroidi . . . . .	43
3.6	Vitesse maximale en fonction de la température . . . . .	44
3.7	Schéma de principe de la mesure d'absorption. . . . .	45
3.8	Exemple de signal d'absorption mesuré . . . . .	45
3.9	Courbe de saturation obtenue pour un jet non-collimaté . . . . .	46
3.10	Densité en fonction de la température . . . . .	47
3.11	Images par fluorescence du jet de césium refroidi et non-refroidi. . . . .	49
3.12	Coupes des jets refroidis et non-refroidis . . . . .	49
3.13	Position des bras horizontaux et verticaux de la mélasse par rapport au tube de sortie du four. . . . .	50
3.14	Densités en fonction de la température du four, avec et sans mélasse . . . . .	52
3.15	Distribution de vitesse longitudinale du jet refroidi pour différentes températures . . . . .	53

3.16	Distributions de vitesse longitudinale dans le jet, avec et sans mélasse optique . . .	53
3.17	Schéma du cône d'émission et du cône de capture . . . . .	54
3.18	Vitesses moyennes en fonction de la température du jet, avec et sans mélasse. . .	55
3.19	Distributions de vitesse normalisées . . . . .	56
3.20	Gain en densité de flux en fonction du désaccord en fréquence . . . . .	56
3.21	Gain en densité de flux en fonction de la puissance du faisceau de refroidissement	57
3.22	Intensité de fluorescence en fonction du temps. . . . .	58
4.1	Spectres GIXRD des films d'or obtenu par évaporation et sputtering . . . . .	64
4.2	Images par microscopie STM des surfaces d'or obtenues par sputtering et évaporation . . . . .	64
4.3	Représentation de l'organisation des molécules de nonanethiols sur la surface d'or	65
4.4	Topographie et microscopie par force latérale des surfaces d'or. . . . .	66
4.5	Image STM de la surface d'or sputtered recouverte par un film moléculaire. . . .	67
4.6	Principe de la lithographie atomique . . . . .	67
4.7	Image AFM en mode contact d'un échantillon exposé pendant 15 minutes. . . .	69
4.8	Image au microscope optique de la transition entre une exposition suffisante et la sous-exposition. . . . .	69
4.9	Profondeur des motifs d'or en fonction du temps de gravure. . . . .	71
4.10	Dispositif expérimental de mesure indirecte du temps de gravure. . . . .	72
4.11	Intensité du pic de diffraction d'ordre 5. . . . .	72
4.12	Procédé de fabrication du réseau de trou. . . . .	73
4.13	Surface d'or gravée après une exposition de 20 minutes du SAM à travers un réseau de trous nanométriques. . . . .	74
4.14	Schéma des positions relatives du masque et de l'échantillon à graver. . . . .	74
4.15	Images MEB du réseau de trous employé pour la lithographie avant l'exposition et après 20 et 40 minutes d'exposition. . . . .	75
4.16	Schéma d'un échantillon d'ouvertures pyramidales. . . . .	76
4.17	Images MEB d'une pyramide du réseau de masque employé. . . . .	76
4.18	Motif obtenu avec un masque pyramidal orienté en aval . . . . .	77
4.19	Motif obtenu avec un masque pyramidal orienté en amont. . . . .	78
1.1	Interface diélectrique/métal . . . . .	88
1.2	Relation de dispersion d'un plasmon polariton de surface . . . . .	90
1.3	Vue schématique d'un plasmon polariton de surface à une interface métal/diélectrique	91
1.4	Ouverture sub-longueur d'onde . . . . .	93
1.5	Densité spectrale d'une ouverture de largeur $a$ . . . . .	95
1.6	Représentation du champ total et des champs homogènes et inhomogènes en $z = 0$	95
1.7	Polarisations TE et TM . . . . .	97
1.8	Taux de transmission en fonction de la longueur d'onde à travers une fente . . .	98
1.9	Spectre de la transmission d'un réseau de trous . . . . .	104
1.10	Réseau d'ouvertures sub-longueur d'onde . . . . .	105
1.11	Relation de dispersion du plasmon polariton de surface en présence d'une modulation périodique. . . . .	106
1.12	Anomalies de Wood-Rayleigh et anomalies de Wood résonantes . . . . .	108

---

1.13	Diffusion de Fano . . . . .	109
1.14	Profil de Fano . . . . .	110
1.15	Fente entourée de sillons périodiques . . . . .	112
1.16	Simulation du champ produit par une ouverture sub-longueur d'onde de 150 nm entourée de 20 sillons . . . . .	114
1.17	Effet de collection en face d'entrée et de collimation en face de sortie . . . . .	115
1.18	Fentes d'Young . . . . .	115
2.1	Dispositif d'imagerie par microscopie de fluorescence . . . . .	121
2.2	Vue détaillée des éléments optiques. . . . .	122
2.3	Schéma de l'interaction hors de l'axe . . . . .	125
2.4	Profil d'émission en fonction de l'angle $\theta$ pour différents désaccords. . . . .	126
2.5	Taux de fluorescence en fonction de l'angle $\theta$ et de la largeur du balayage . . . . .	126
2.6	Image par microscopie électronique d'une structure étudiée. . . . .	128
2.7	Images par microscopie de fluorescence . . . . .	129
2.8	Coupes transverses des images . . . . .	130
2.9	Premier dispositif de mesure de la distribution angulaire . . . . .	131
2.10	Principe de la mesure de l'angle d'émission . . . . .	131
2.11	Comparaisons des mesures de profil angulaire . . . . .	133
2.12	Divergence en fonction du nombre de sillons . . . . .	134
3.1	Dispositif de mesure du taux de transmission. . . . .	136
3.2	Goniomètre . . . . .	138
3.3	Spectre angulaire d'un réseau micrométrique. . . . .	139
3.4	Schéma d'un alignement imparfait entre le plan d'émission et le plan de l'arc de cercle décrit par le détecteur . . . . .	141
3.5	Procédé de fabrication d'un œil de bœuf à deux faces. A : gravure du substrat de verre, B : dépôt du film d'argent, C : gravure du film d'argent. . . . .	142
3.6	Image AFM des structures œil de bœuf à une et deux faces. . . . .	142
3.7	Distribution angulaire d'intensité d'un œil de bœuf à une face . . . . .	144
3.8	Distribution angulaire d'intensité d'un œil de bœuf à deux faces. . . . .	145
3.9	Sillons latéraux non-décalés et décalés . . . . .	147
3.10	Intensité transmise en face d'entrée en fonction de la distance fente-sillons . . . . .	148
3.11	Effet simulé d'un désaccord entre $d$ et $\lambda_s$ . . . . .	148
3.12	Spectres angulaires de quelques structures fente + 5 sillons décalés. De haut en bas : $n = 3$ , $n = 7$ , $n = 21$ . . . . .	149
3.13	Spectres angulaires des structures non-décalées et décalées pour $n = 7$ . . . . .	150
3.14	Interférence entre les champs issus de la fente et du sillon $k$ . . . . .	151
3.15	Simulation et spectres du diagramme d'émission de fentes uniques entourées de 5 sillons périodiques . . . . .	152
3.16	Spectre expérimental et simulation pour la structure $n=20$ . . . . .	153
4.1	Exemple de cartographie d'une plaque d'échantillons. . . . .	156
4.2	Définitions géométriques d'un doublet fente-sillon . . . . .	158
4.3	Schéma des différents champs considérés en face de sortie. . . . .	158

4.4	Chemins d'interférences en face d'entrée . . . . .	160
4.5	Chemins d'interférences en face de sortie . . . . .	161
4.6	Différence de chemin entre les faisceaux émis par la fente et par le sillon . . . . .	161
4.7	Spectre angulaire – structures en face d'entrée . . . . .	163
4.8	Images au microscope électronique à balayage de deux éléments des séries de structures étudiées . . . . .	164
4.9	Intensité transmise en fonction de la distance pour différentes séries de motifs . . . . .	165
4.10	Exemples de spectres angulaires brut de fentes non-décorées. . . . .	167
4.11	Spectres angulaires de motifs 1 fente + 1 sillon . . . . .	168
4.12	Fréquence angulaire d'une série de structures . . . . .	169
4.13	Amplitude relative de l'onde diffractée . . . . .	170
4.14	Retard de phase du champ issu du sillon . . . . .	172
4.15	valeurs de l'indice de surface . . . . .	172
4.16	Composante constante de l'amplitude relative de l'onde diffractée en fonction de la profondeur du sillon. . . . .	174
4.17	Phase intrinsèque de l'onde diffractée en fonction de la profondeur des sillons pour deux largeurs différentes. . . . .	175
4.18	Diagramme d'émission normalisé de sillons de $415 \times 224\text{nm}^2$ . . . . .	176
4.19	Asymétrie en fonction de la profondeur des sillons – sillons larges. . . . .	176
A.1	Vue schématique de la figure d'interférence de deux faisceaux copropageants. . . . .	190
A.2	Simulation de la distribution de densité atomique dans le jet dans un plan $(x, z)$ . . . . .	192
A.3	Dispositif expérimental de la focalisation par onde stationnaire . . . . .	193
A.4	Image par fluorescence du jet atomique modulé par le réseau de lentilles optiques . . . . .	194
A.5	Coupe selon l'axe $y$ de l'image par fluorescence dans le plan focal . . . . .	194
A.6	Variation du contraste de la modulation en fonction du désaccord de l'onde stationnaire. . . . .	195
A.7	jet non modulé éclairé par la sonde modulée . . . . .	197
A.8	Coupe selon l'axe $y$ au centre de l'image de la figure A.7 . . . . .	197
A.9	Dispositif expérimental de la détection par démodulation . . . . .	198
A.10	Signal de fluorescence total en fonction de la phase relative de la sonde . . . . .	199
A.11	Contraste mesuré par détection directe et contraste du signal de démodulation pour différent désaccords . . . . .	200
A.12	Transformées de Fourier des coupes données dans les figures A.8 et A.5 . . . . .	200
A.13	Méthode de démodulation proposée à $\lambda/2$ . . . . .	202
B.1	Circuit du démodulateur . . . . .	204
B.2	Circuit du correcteur . . . . .	206
B.3	Asservissement de balayage . . . . .	207
C.1	Boîtier de contrôle de la température . . . . .	210
D.1	Niveaux d'énergie de la transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ . . . . .	212
D.2	Spectres d'absorption saturée de la raie D2 du césium. . . . .	213
D.3	Diagramme des phases du césium . . . . .	214

# Avant propos

La maîtrise des méthodes de manipulation magnéto-optiques des atomes permet aujourd'hui de piéger, manipuler et souvent condenser plus de vingt éléments du tableau périodique de Mendeleiev [1]. Dans ce domaine extrêmement vivant, notre équipe de recherche s'intéresse aux interactions de gaz d'atomes froids et de structures de tailles sub-micrométriques. Dans ce cadre, des atomes froids peuvent permettre de réaliser des nanostructures ou, réciproquement, des nanostructures peuvent être employées pour manipuler des atomes froids, par exemple par l'intermédiaire des champs optiques créés par ces objets. Ce travail de thèse m'a amené à considérer certains aspects de ces deux thématiques : d'une part, le jet de césium que nous avons développé a été appliqué à la nano-lithographie d'une surface d'or. D'autre part, nous avons étudié la réponse optique d'ouvertures sub-longueur d'onde dans des films métalliques, en tant que sources possibles de pièges et de guides dipolaires pour les atomes. Si les objectifs à long terme de ces deux études convergent vers le contrôle des atomes froids près des surfaces, elles sont en pratique assez disjointes, et constituent deux parties presque indépendantes. Le contexte et l'organisation détaillée de ces deux études seront présentés dans leurs introductions respectives.

Une partie de ce travail a été menée dans le cadre de deux programmes de recherches européen :

- le programme d'échange et de collaboration FastNET (Field Atom Surface Training Network), avec des équipes de recherches de Paris, Londres, Innsbruck, Bonn, Sienna, Odense, Heidelberg et Potsdam,
- et le projet de recherche NANOCOLD du cinquième programme cadre européen, en compagnie des équipes de E. Arimondo à Pise, D. Meschede à Bonn, E. Oesterschulze à Kassel et A. Pimpinelli à Clermont Ferrand.

L'équipe de E. Oesterschulze nous a fourni les masques pyramidaux utilisés dans les expériences de lithographie, qui ont en outre profité des savoir-faire des équipes de D. Meschede et E. Arimondo.

Les expériences sur les ouvertures sub-longueur d'onde ont été possibles grâce au concours de T.W. Ebbesen à l'ISIS à Strasbourg. H. Lezec a réalisé l'ensemble des structures présentées, d'abord à Strasbourg, puis à Caltech, dans l'équipe de H. Atwater.

Les résultats présentés ici sont le fruit de la collaboration de toute l'équipe de recherche : B. Viaris, C. O'Dwyer, O. Alloschery, R. Mathevet et J. Weiner.

Première partie  
Lithographie atomique



# Introduction

Les jets moléculaires et atomiques sont depuis longtemps des instruments de choix pour l'étude des propriétés de la matière. C'est avec un jet d'atomes d'argent que O. Stern et W. Gerlach ont mis en évidence l'existence du spin en 1920 [2]. Ces sources d'atomes sont généralement constituées d'un réservoir effusant à travers un tube allongé ou un ensemble de capillaires permettant d'obtenir un flux continu d'atomes [3]. On distingue les jets thermiques obtenus à des températures relativement faibles et les jets supersoniques obtenus pour des températures telles que la vitesse moyenne dans le gaz soit supérieure à la vitesse du son. Le jet décrit ici est thermique. Les méthodes de manipulation atomique par des champs lumineux et magnétostatiques ont ensuite permis l'émergence du domaine de l'optique atomique [4, 5]. Les trajectoires atomiques sont analogues aux rayons de l'optique géométrique, et on peut focaliser, séparer ou même réfléchir un faisceau d'atomes grâce à ces forces. Cette analogie se prolonge avec l'optique ondulatoire : on sait réaliser des expériences de diffraction d'un ensemble d'atomes à travers des potentiels lumineux périodiques [6].

Dans les années 1990, ces méthodes de manipulation d'atomes, principalement des alcalins et des gaz rares métastables<sup>1</sup>, ont trouvé une application pratique dans le domaine des nanotechnologies, plus précisément dans celui de la réalisation de motifs matériels aux échelles sub-micrométriques [1]. L'utilisation d'atomes est intéressante à plusieurs titres : en optique atomique, la limite de diffraction, donnée par la longueur d'onde de de Broglie des atomes, est de l'ordre de  $0,2 \cdot 10^{-12}$  m pour un gaz à température ambiante. D'autre part, pour tout faisceau de particule, la densité dans l'espace des phases est constante sous l'action de forces conservatives<sup>2</sup> comme la force électrostatique employée pour focaliser un faisceau ionique ou électronique. Ceci implique qu'une augmentation importante de la localisation spatiale d'un tel faisceau, limitée à la source par la répulsion coulombienne, passe par une augmentation importante de la quantité de mouvement des particules le composant. Les énergies cinétiques des faisceaux ioniques et électroniques focalisés sont donc importantes, de l'ordre de plusieurs kiloélectronvolts. Pour un jet d'atome neutre par contre, la densité n'est pas limitée par la répulsion coulombienne et l'existence de forces dissipatives (la pression de radiation) permet d'augmenter cette densité dans l'espace des phases. On peut donc localiser spatialement des atomes avec une limite théorique très basse, et à des énergies cinétiques très faibles, typiquement de quelques dizaines de milliélectronvolts par atomes pour un jet d'alcalins. La lithographie atomique est donc une lithographie "douce". Il n'est dès lors pas possible d'utiliser un faisceau atomique pour la gravure directe de métaux ou de semi-conducteurs. On passera plutôt, comme

---

<sup>1</sup>Du fait de la simplicité du diagramme d'états électroniques, ces éléments sont aisément manipulables par les forces radiatives.

<sup>2</sup>Il s'agit de l'équivalent particulaire du théorème de Liouville en optique.

en lithographie par ultra-violet, par une résine intermédiaire sensible à l'exposition au faisceau employé, avant une gravure chimique. Dans le cas des jets de gaz rares, l'énergie interne de l'état métastable, entre 8 et 20 eV, permet d'endommager la résine protectrice. Dans le cas des alcalins, c'est la réactivité chimique de l'atome qui entrera en jeu.

Mais les faisceaux d'atomes ne sont pas uniquement un instrument de lithographie. Certaines espèces peuvent en effet être des constituants même des objets nanométriques que l'on souhaite réaliser [7]. Par exemple, une couche d'atomes de césium déposée sur la surface d'un semi-conducteur III-V dopé positivement permet d'activer un effet photo-électrique sur cette surface. Le dispositif expérimental décrit ici a été conçu avec le projet de réaliser un dépôt direct de césium sur un substrat d'arséniure de gallium. La structuration périodique de ce dépôt par des masques optiques et matériels permettrait d'obtenir une source d'électrons originale. En effet, si la période du réseau de nano-photocathodes est suffisamment faible (inférieure à la longueur de cohérence des électrons dans le cristal, soit typiquement  $1\ \mu\text{m}$ ), on doit observer les effets de cette périodicité sur les propriétés des électrons émis à la surface [8, 9].

Avec cet objectif, nous avons d'abord mis en place un système de vide adapté à la réalisation de photocathodes, qui nécessitent un vide très poussé – inférieur à  $10^{-10}$  mBar. À une extrémité de ce dispositif, un four permet de produire une vapeur de césium, qui se propage dans les enceintes sous vide. Ce dispositif est présenté au chapitre 2. Les caractéristiques du jet obtenu sont détaillées au chapitre 3. Une fois ces éléments réunis, la deuxième étape dans la réalisation d'un jet atomique adapté à la lithographie s'appuie sur les forces radiatives pour refroidir le jet, c'est-à-dire augmenter sa densité dans l'espace des phases. Nous avons mis en place une mélasse optique à deux dimensions à la sortie du four, permettant de collecter les atomes effusant du tube et de produire un jet dense et collimaté (chapitre 3.3). Après cette étape nous avons obtenu un flux de césium de  $10^{11}$  atomes par secondes avec une divergence inférieure à 1 mrad.

Le troisième élément essentiel à une expérience de lithographie est le masque employé pour modifier la distribution de densité dans le jet. Deux méthodes permettant de localiser les atomes du jet avant leur dépôt sur un substrat ont été étudiées, d'abord avec un masque optique puis à l'aide de masques matériels. Dans les premières expériences, la distribution de densité dans le jet est modulée périodiquement sous l'action de la force dipolaire créée par une onde laser stationnaire. Nous avons cherché à démontrer une méthode de détection optique permettant de déterminer les caractéristiques de la distribution de densité dans le jet, en s'affranchissant de la limite de résolution. Les contraintes de notre programme de recherche ne nous ont malheureusement pas permis de conclure ces expériences. Les premiers résultats, limités à une modulation macroscopique de la densité dans le jet sont néanmoins rapportés, pour mémoire, dans l'annexe A.

Dans la deuxième série d'expériences, le jet traverse des masques matériels nanométriques dans un dispositif de lithographie *via* des monocouches moléculaires auto-assemblées déposées sur de l'or. Nous avons d'abord caractérisé les cinétiques des différentes étapes du procédé de gravure pour notre dispositif expérimental. Les masques matériels employés ensuite ont permis d'obtenir un réseau de motifs circulaires de 280 nm de diamètre, espacés de  $25\ \mu\text{m}$ . Ces expériences sont décrites au chapitre 4. Elles constituent la première étape de la réalisation d'un dispositif de "stylet atomique", qui doit permettre de déposer des atomes selon des motifs arbitraires avec une résolution de quelques centaines de nanomètres, en déplaçant le masque employé par rapport au substrat.

Avant de rentrer dans les détails de notre dispositif expérimental, nous donnons dans le

---

chapitre suivant quelques rappels sur les notions de bases de l'interaction d'un atome de césium avec le rayonnement laser que nous retrouverons fréquemment par la suite.



# Chapitre 1

## Interactions du césium avec la lumière

### 1.1 Introduction

Nous donnons dans ce chapitre un inventaire rapide des différents phénomènes observés lors de l'interaction entre des atomes de césium et un rayonnement laser. Dans notre travail, les principes rappelés ici ont été mis en œuvre pour la manipulation des atomes. Ces méthodes expérimentales constituent depuis une dizaine d'années au moins des techniques éprouvées de la physique atomique expérimentale. Un tableau complet des différents éléments de cette description est donné dans les livres de C. Cohen-Tanoudji [10] pour l'interaction rayonnement/matière, et de H. Metcalf et P. Van Straten [4] pour les techniques de refroidissement et de piégeage. Nous reprenons ici rapidement les premiers chapitres de ces ouvrages, dans le but de fixer les notations employées par la suite et de donner la base commune des diverses situations où nous avons employé un rayonnement laser pour détecter ou manipuler des atomes de césium.

Le laser est un couteau suisse à trois lames : il permet de détecter, refroidir et piéger des atomes. Avec un laser accordé à résonance sur une transition électronique, on peut détecter le rayonnement de fluorescence émis par des atomes ou mesurer le taux d'absorption dans le faisceau laser (section 1.2). Lorsqu'on s'éloigne de la résonance, un rayonnement laser permet aussi d'appliquer des forces sur un gaz d'atome. Ces forces radiatives sont de deux types : la pression de radiation, dissipative, qui permet de "refroidir" un ensemble d'atomes (section 1.3.1), et la force dipolaire, conservative, qui permet de le guider et de le piéger (section 1.3.2).

### 1.2 Absorption et émission de radiation

La structure électronique des alcalins, avec un électron unique sur la couche de valence, possède un schéma simple, avec notamment deux transitions fermées entre deux états hyperfins dans l'une des raies du doublet, par exemple les transitions :  $6S_{1/2}, F = 4, m_F = 4 \rightarrow 6P_{5/2}, F' = 5, m'_F = 5$  et  $6S_{1/2}, F = 3, m_F = 3 \rightarrow 6P_{5/2}, F' = 2, m'_F = 2$  pour la raie D2 du césium. Ces transitions sont particulièrement indiquées pour la détection par fluorescence. Excité par un laser accordé sur la résonance d'une de ces transitions, un atome de césium passe continûment de l'état fondamental à l'état excité par absorption d'un photon du faisceau laser puis de l'état excité à l'état fondamental par émission stimulée et spontanée. Ce rayonnement de fluorescence peut être détecté par un instrument optique.

Dans un premier temps, on considérera un atome à deux niveaux, traité dans l'approximation semi-classique : les degrés de liberté internes (moments cinétiques et de spin) de l'atome sont quantifiés, tandis que ses degrés de liberté externes (position et quantité de mouvement) sont traités classiquement. Soit une transition électronique entre deux niveaux  $|f\rangle$  et  $|e\rangle$ , d'énergies  $E_f$  et  $E_e$ . La fréquence de résonance  $\nu_0$  de cette transition est telle que  $h\nu_0 = E_f - E_e$ . On note  $\omega_0 = 2\pi\nu_0$  la pulsation associée. L'état excité a une durée de vie finie notée  $\tau$  et une largeur naturelle associée  $\Gamma = 1/\tau$ .

Cet atome est plongé dans un champ laser  $\{\mathbf{E}(x, y, z, t), \mathbf{B}(x, y, z, t), \mathbf{k}(x, y, z, t)\}$  d'intensité  $I = (\varepsilon_0 c/2)\mathbf{E}\mathbf{E}^*$  et de pulsation  $\omega_l$ . L'écart entre cette pulsation et la pulsation de résonance est appelé désaccord et noté  $\delta_\omega = \omega_l - \omega_0$ .

On définit la pulsation de Rabi résonnante  $\Omega_0$  de la transition par le produit :

$$\Omega_0 = \frac{\mu_{fe}E}{\hbar} \quad (1.1)$$

Où  $E$  est l'amplitude du champ électrique du laser, et  $\mu_{fe}$  le moment dipolaire de la transition. Le taux de transition de l'état fondamental vers l'état excité  $\rho_{ef}$  vérifie l'équation 1.2.

$$\rho_{ef} = \frac{\Gamma}{2} \frac{\Omega_0^2}{\Omega_0^2 + (\Gamma/2)^2 + \delta_\omega^2} = \frac{\Gamma}{2} \frac{s}{1+s} \quad \text{avec } s = \frac{\Omega_0^2/2}{\Gamma^2/4 + \delta_\omega^2} \quad (1.2)$$

Le terme  $s$  est appelé paramètre de saturation. On définit l'intensité de saturation  $I_{sat}$  telle qu'à cette intensité le paramètre de saturation à résonance ( $\delta_\omega = 0$ ) soit égal à 1. On peut alors écrire  $s_0 = I/I_{sat}$ . L'intensité de saturation pour la transition  $6S_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6P_{3/2}, F' = 5$  du césium vaut  $1,1 \text{ mW.cm}^{-2}$ . Pour des intensités inférieures à l'intensité de saturation, on est en régime *linéaire* et le taux de transition varie linéairement avec l'intensité laser :

$$\rho_{ef} \simeq \frac{\Gamma}{2} \frac{I}{I_{sat}} \quad \text{pour } s \ll 1 \quad (1.3)$$

Asymptotiquement, le taux de transition vaut  $\Gamma/2$ , et la moitié de la population est dans l'état excité. Dans ce cas, un atome rayonne un photon de fluorescence tous les intervalles de temps  $\tau$  en moyenne. L'énergie d'un tel photon est de  $1,46 \text{ eV}$ , la puissance rayonnée par un atome à saturation vaut donc  $P_{sat} = h\nu_0/\tau$  soit  $3,5 \text{ pW}$ . C'est cette grandeur qui sera employée pour déterminer la densité atomique dans le jet dans les expériences d'absorption (§3.2.2).

Pour un laser polarisé circulairement, la transition  $6S_{1/2}, F = 4, m_F = 4, \rightarrow 6P_{3/2}, F' = 5, m_{F'} = 5$  du césium est une transition fermée et peut donc être considérée en bonne approximation comme un système à deux niveaux. Nous donnons dans le tableau 1.1 les valeurs des différentes grandeurs rencontrées ci-dessus pour cette transition.

Ces grandeurs sont données dans l'approximation d'un atome à deux niveaux. En pratique, la structure hyperfine de l'atome oblige à tenir compte des rapports de branchement entre les différents sous-niveaux magnétiques et l'interaction atome/laser dépend de la polarisation du champ électromagnétique. Comme nous allons le voir, les autres niveaux de la structure hyperfine doivent aussi être pris en considération.

### 1.2.1 Pompage optique

La largeur spectrale des transitions implique un recouvrement non nul entre deux transitions voisines. Ainsi, avec un rayonnement laser résonnant sur la transition  $6S_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6P_{3/2}, F' =$

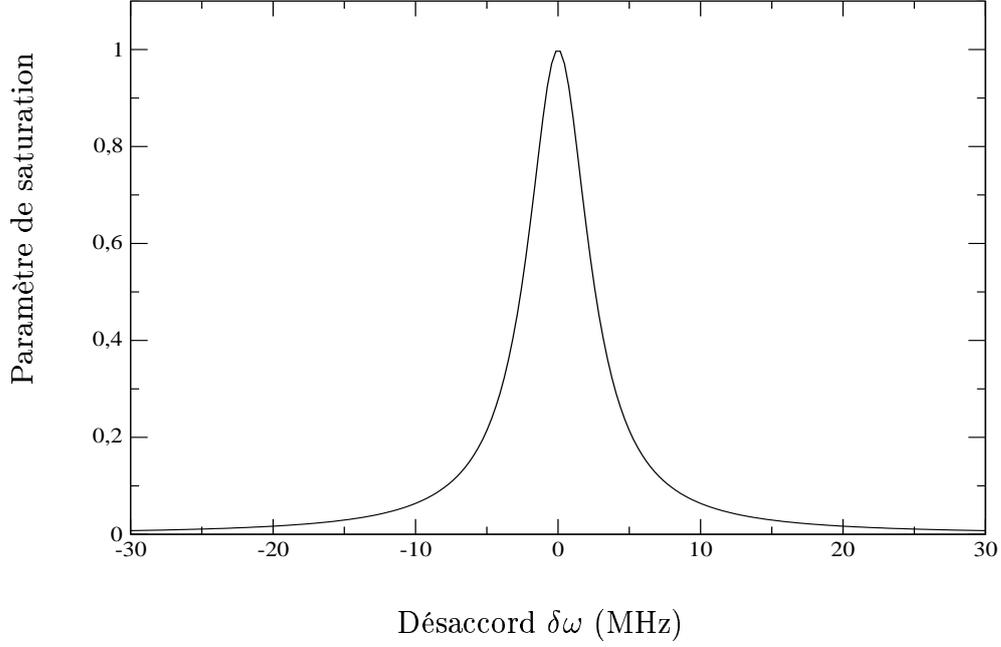


FIG. 1.1: Paramètre de saturation en fonction du désaccord pour la transition  $6S_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6P_{3/2}, F' = 5$  du césium et une intensité laser de  $1,1 \text{ mW.cm}^{-2}$ .

Longueur d'onde	$\lambda$	852,35 nm (vide) – 852,11 (air)
Énergie de résonance	$h\nu_0$	1,455 eV
Durée de vie	$\tau$	30,5 ns
Largeur naturelle	$\Gamma$	$2\pi$ 5,22 MHz
Intensité de saturation	$I_{sat}$	$1,1 \text{ mW.cm}^{-2}$
Puissance rayonnée à saturation	$P_{sat}$	3,5 pW

TAB. 1.1: La transition  $6S_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6P_{3/2}, F' = 5$ , d'après [4]

5, la probabilité d'absorption vers le niveau excité  $6P_{3/2}, F' = 4$  est non nulle. Cette transition conduit au peuplement du sous-niveau fondamental  $6S_{1/2}, F = 3$ . Une fois dans ce sous-niveau, les atomes n'interagissent plus avec le faisceau laser incident, et ne sont plus détectés. La différence de fréquence entre ces deux transitions vaut 256 MHz, soit environ cinquante fois la largeur naturelle. La probabilité de transition vers le sous-niveau  $F = 3$  est donc très faible<sup>3</sup>, mais le temps d'interaction est souvent suffisamment long pour que cette perte par pompage optique soit importante. Il est alors nécessaire d'ajouter un faisceau laser supplémentaire pour *repomper* les atomes dans le sous-niveau  $F = 4$ .

## Coefficients de Clebsch-Gordan

D'autre part, les règles de sélection entre les sous-niveaux magnétiques des états fondamental et excité d'une transition donnée, qui dépendent de la polarisation de la lumière incidente, se traduisent par des coefficients de couplages différents entre ces niveaux, appelés rapports de branchements, et reliés au coefficient de Clebsch-Gordan de chaque sous-niveau magnétique. Si l'on veut connaître précisément le comportement de l'interaction entre un faisceau laser et un atome, il faudra tenir compte de ces coefficients. Ils sont donnés dans l'ouvrage de H. Metcalf et P. Van Straten pour toutes les transitions de la raie D2 du césium [4].

Pour faire fonctionner un faisceau laser à des fréquences proches de la résonance, avec une précision absolue et une largeur de raie inférieure à  $\Gamma$ , il faut pouvoir mesurer la fréquence du laser avec une précision relative meilleure que  $\Gamma/(2\pi\nu_0) \simeq 10^{-8}$ . La méthode de spectroscopie par absorption saturée permet une telle précision, grâce à l'atome de césium lui-même.

### 1.2.2 Absorption saturée

Pour des atomes de vitesse  $\mathbf{v}$ , la probabilité d'absorption est une lorentzienne de largeur  $\Gamma$  centrée en  $\omega_0 + \mathbf{k}_l \mathbf{v}$  à cause de l'effet Doppler. À température ambiante, la vitesse quadratique moyenne d'une vapeur de césium, donnée par  $\bar{v} = \sqrt{8k_B T / \pi m}$  vaut environ 200 m.s<sup>-2</sup>, et on a  $k\bar{v} \simeq 1,5$  GHz. La forme de la raie d'absorption de la vapeur sera donnée par la convolution de la probabilité d'absorption pour chaque classe de vitesse et de la distribution de vitesse dans le gaz. La largeur du profil de Voigt obtenu est de l'ordre de  $k\bar{v} \gg \Gamma$ . On ne peut donc pas avoir un référence de fréquence absolue et assez précise avec une simple spectroscopie d'absorption.

La spectroscopie par absorption saturée permet de s'affranchir de l'effet Doppler et de résoudre les raies d'absorption de la structure hyperfine.

Une cellule de verre contenant du césium est traversée par deux faisceaux contre-propageant, la pompe et la sonde, d'intensités respectives  $I_p$  et  $I_s$ , telles que  $I_p > I_{sat}$  et  $I_s \ll I_{sat}$ . La fréquence commune de ces lasers est notée  $\omega_l$ , leurs vecteurs d'onde  $\mathbf{k}_p = k_l \mathbf{e}_x$  et  $\mathbf{k}_s = -k_l \mathbf{e}_x$  (voir le schéma de la figure 1.2).

Un même atome sera en résonance en même temps avec la pompe et la sonde si :

$$\omega_l = \omega_0 + k_l v_x \text{ et } \omega_l = \omega_0 - k_l v_x \text{ soit,} \quad (1.4)$$

$$v_x = 0 \text{ et } \omega_l = \omega_0 \quad (1.5)$$

---

<sup>3</sup>On donnera un exemple de calcul complet du taux de perte par pompage optique dans le paragraphe sur la mélasse optique, voir §1.3.1.

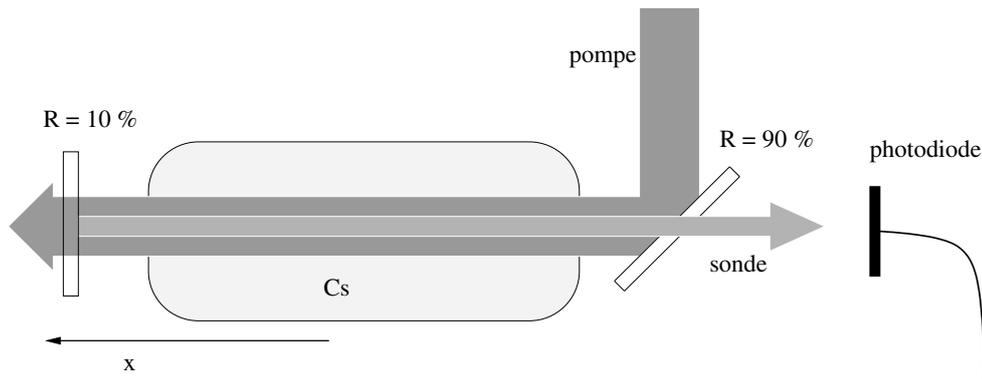


FIG. 1.2: Schéma de principe d'une mesure d'absorption saturée.

On mesure le taux d'absorption du laser sonde en fonction de  $\omega_l$  à l'aide d'une photodiode. Lorsque  $\omega_l = \omega_0$ , la pompe sature la transition des atomes de composante de vitesse nulle et l'absorption de la sonde est diminuée. On observe donc un trou dans le profil d'absorption. Ce trou est centré sur la résonance de la transition et sa largeur est égale à la largeur naturelle de la transition, comme illustré sur la figure 1.3. On a donc obtenu par cette méthode une mesure absolue de la fréquence du laser, avec une précision meilleure que la largeur naturelle de la transition.

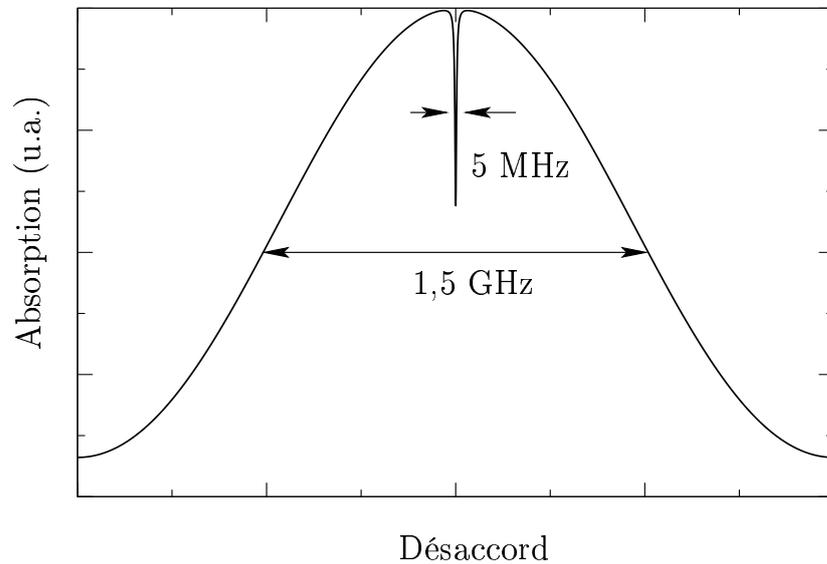


FIG. 1.3: Spectre d'absorption saturée simulé pour un atome à deux niveaux.

### Atomes à plusieurs niveaux excités.

Dans le cas où il y a plusieurs transitions possibles, on observe un pic d'absorption saturée pour chacune de ces transitions.

Il est d'autre part possible qu'une classe de vitesse participe à deux transitions différentes, de fréquences de résonance  $\omega_1$  et  $\omega_2$  avec la pompe et la sonde, respectivement. On a alors :

$$\omega_l - k_l v_x = \omega_1 \quad (1.6)$$

$$\omega_l + k_l v_x = \omega_2 \quad (1.7)$$

qui possède une solution pour  $\omega_l = (\omega_1 + \omega_2)/2$ , pour la classe de vitesse  $v_x = (\omega_2 - \omega_1)/2k_l$ . On trouve aussi un trou dans la courbe d'absorption à cette fréquence, le pic correspondant est appelé un croisement de niveaux. La figure 1.4 donne le spectre expérimental mesuré pour la transition  $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$ . Les fréquences des différents pics sont données en annexe.

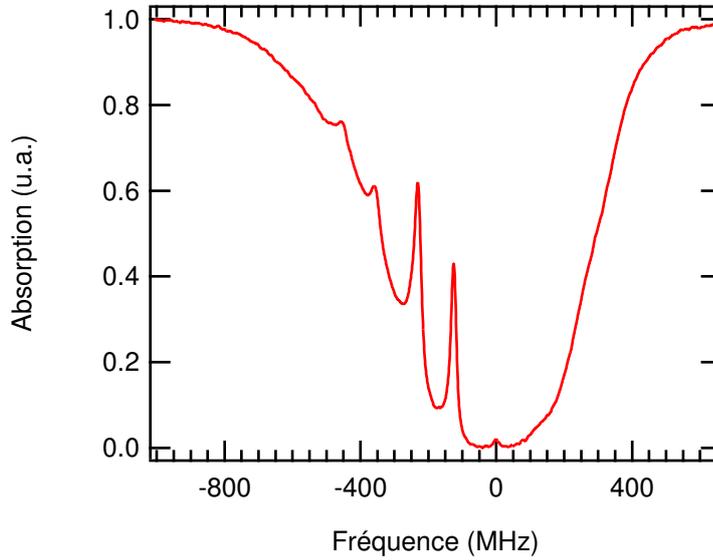


FIG. 1.4: Spectre d'absorption saturée mesuré pour la transition  $F = 3 \rightarrow F = 4$ .

Nous verrons par la suite (au §2.3.2) comment ce spectre d'absorption est utilisé pour asservir en fréquence les différents lasers employés dans le dispositif expérimental. La précision des fréquences obtenues permet, outre la détection par fluorescence, de contrôler les degrés de liberté des atomes avec un rayonnement laser. Ce contrôle s'exerce grâce aux deux forces en jeu dans l'interaction laser/matière : les forces radiatives, que nous allons rapidement présenter maintenant.

## 1.3 Forces radiatives

Deux aspects de l'interaction laser matière permettent de contrôler les degrés de liberté externes d'un atome :

- l'effet mécanique de transfert de quantité de mouvement du photon absorbé vers l'atome,

- et l'interaction dipolaire entre un gradient de champ électromagnétique et le dipôle induit par ce champ dans l'atome.

Chacun de ces aspects peut être exprimé par une force exercée par le rayonnement laser sur l'atome, la pression de radiation pour le premier, et la force dipolaire pour le second. Nous allons voir comment chacune de ces forces dépendent de la fréquence et de l'intensité du laser.

### 1.3.1 Pression de radiation et refroidissement Doppler

#### Pression de radiation

Considérons un atome à deux niveaux se déplaçant avec une composante de vitesse  $v_x$  selon l'axe  $x$ , et un faisceau laser de fréquence  $\omega_l$  proche de la résonance, se propageant en sens inverse. L'atome absorbe des photons du faisceau laser puis les ré-émet. A chaque absorption, sa quantité de mouvement  $m\mathbf{v}$  est modifiée d'une quantité  $\hbar\mathbf{k}$  selon l'axe  $x$ , dans le sens de propagation du laser, et la vitesse est diminuée d'une quantité  $v_r = \hbar k/m$  appelée vitesse de recul. Si un photon est ensuite ré-émis par émission stimulée, la vitesse nette de l'atome n'a pas changée. L'émission spontanée (fluorescence) est par contre isotrope, donc la modification associée de la quantité de mouvement de l'atome est nulle en moyenne sur un grand nombre de cycle. Ainsi, l'accumulation de cycles absorption/émission spontanée conduit à une modification nette de la vitesse de l'atome. On déduit l'accélération nette de l'atome du taux d'absorption donné par l'équation (1.2) :

$$\mathbf{a} = -\Gamma/2 \frac{s}{s+1} \frac{\hbar\mathbf{k}}{m} \quad (1.8)$$

Pour la transition  $6S_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6P_{3/2}, F' = 5$  avec  $s = 0,5$ , on obtient une accélération de  $3,7 \cdot 10^3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-2}$ , soit environ quatre cent fois l'accélération due à la pesanteur. En notant  $I_{sat}$  l'intensité de saturation, et en remarquant que  $\Omega^2 = \frac{I}{I_{sat}}\Gamma^2/4$ , on peut écrire la force subie par l'atome sous la forme :

$$\mathbf{F}_+ = \frac{\hbar\mathbf{k}\Gamma}{2} \left[ \frac{I/I_{sat}}{\left(\frac{2(\delta_\omega + kv_x)}{\Gamma}\right)^2 + I/I_{sat} + 1} \right] \quad (1.9)$$

Nous allons voir que dans les bonnes conditions, la pression de radiation permet de diminuer la largeur de la distribution de vitesse d'un gaz d'atomes, c'est-à-dire sa température cinétique.

#### Refroidissement Doppler

Imaginons maintenant que le faisceau considéré précédemment soit rétro-réfléchi. La force exercée par le faisceau réfléchi s'écrit :

$$\mathbf{F}_- = \frac{\hbar\mathbf{k}\Gamma}{2} \left[ \frac{I/I_{sat}}{\left(\frac{2(\delta_\omega - kv_x)}{\Gamma}\right)^2 + I/I_{sat} + 1} \right] \quad (1.10)$$

La force totale ressentie par l'atome est la somme de ces deux forces. Pour un désaccord donné, cette force est maximale pour  $kv_x = \pm\delta_\omega$ ,  $v_c = |\delta_\omega|/k$  est appelée vitesse de capture. Pour  $\delta_\omega = -\Gamma$ ,  $v_c = 4,42 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

Un tracé de  $\mathbf{F}_+ + \mathbf{F}_-$  d'après les expressions (1.9) et (1.10) est donné dans la figure 1.5. Pour  $|v| < v_c$ , la résultante s'oppose au mouvement de l'atome, qui est donc amorti.

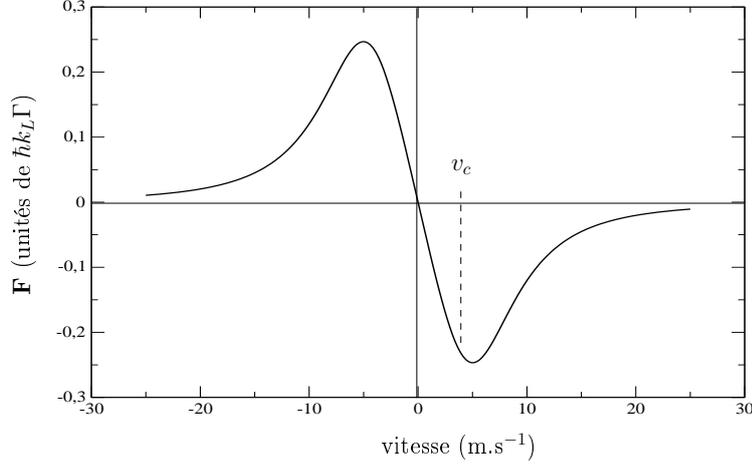


FIG. 1.5: Force dissipative en fonction de la vitesse d'un atome de césium pour un décalage de  $-\Gamma$  et une intensité de  $2I_{sat}$ . La vitesse  $v_c$  est la vitesse de capture Doppler

Dans la limite où le décalage Doppler est faible devant le désaccord et la largeur de raie (soit  $v_x \ll 5\text{m.s}^{-1}$ ), on peut écrire :

$$\mathbf{F} = \mathbf{F}_+ + \mathbf{F}_- \simeq 4\hbar\mathbf{k} \frac{I}{I_{sat}} \frac{kv_x 2\delta_\omega/\Gamma}{[1 + I/I_{sat} + (2\delta_\omega/\Gamma)^2]^2} \quad (1.11)$$

si le désaccord  $\delta_\omega$  entre la fréquence du laser et la fréquence de résonance est négatif, c'est-à-dire si la fréquence laser est décalée vers le rouge de la transition. On peut écrire cette équation sous la forme :

$$m \frac{dv}{dt} = \alpha_D v, \quad \alpha_D = 4\hbar k^2 \frac{I}{I_{sat}} \frac{2\delta_\omega/\Gamma}{[1 + I/I_{sat} + (2\delta_\omega/\Gamma)^2]^2} \quad (1.12)$$

La vitesse diminue d'un facteur  $1/e$  en un temps  $\tau_D = -m/\alpha_D$ . Dans le cas du césium, pour un désaccord de  $-\Gamma$  et une intensité de  $I_{sat}$ ,  $\tau_D = 82 \mu\text{s}$ .

Cependant la vitesse ne diminue pas indéfiniment. Rappelons en effet que l'émission spontanée produit un variation de la vitesse de l'atome d'une quantité  $v_r$  dans une direction aléatoire. Ceci entraîne une agitation aléatoire résiduelle. On peut montrer [4] que l'équilibre correspond à une température  $T$  telle que :

$$k_B T = \frac{\hbar\Gamma}{4} \frac{1 + (2\delta_\omega/\Gamma)^2}{2|\delta_\omega|/\Gamma} \quad (1.13)$$

Cette expression possède un minimum pour un désaccord de  $-\Gamma/2$ . Ce minimum correspond la température la plus faible que l'on puisse atteindre par refroidissement Doppler, et est naturel-

lement appelée limite Doppler :

$$T_D = \frac{\hbar\Gamma}{2k_B T}$$

Elle vaut 124  $\mu\text{K}$  pour le césium.

Cette méthode de refroidissement d'un gaz d'atomes est très efficace, et on arrive facilement à la limite Doppler. En fait, cette limite est souvent dépassée, comme nous le verrons plus loin (p.16).

Cette méthode a été employée dans le dispositif expérimental pour refroidir transversalement notre jet de césium. Pour cela, on place deux paires de faisceaux laser selon les deux directions perpendiculaires à l'axe de propagation du jet. Les composantes transverses des atomes sont ainsi amorties et on peut obtenir un jet atomique bien collimaté (voir le §3.3). À condition toutefois de prendre deux précautions expérimentales : il faut se prémunir des effets de pompage optique dans d'autres états de la structure fine et contrôler le champ magnétique dans la région d'interaction, pour éviter de décaler la fréquence de la transition par effet Zeeman.

## Repompage

Le désaccord des lasers de refroidissement par rapport à la transition  $F = 4 \rightarrow F' = 4$ , noté  $\delta_{\omega 44}$  vaut 250 MHz. En polarisation linéaire, les rapports de branchement des transitions  $F = 4 \rightarrow F' = 5$  et  $F = 4 \rightarrow F' = 4$  valent respectivement 11/27 et 7/36. Le rapport de branchement en émission de la transition  $F' = 4 \rightarrow F = 3$  vaut en outre 5/12. On peut donc évaluer le taux de désexcitation dans le sous-niveau  $F = 3$  du fondamental, en prenant un taux d'absorption de 1 pour la transition *résonnante*  $F = 4 \rightarrow F' = 5$ , un désaccord de  $-\Gamma$ , et une intensité de  $2I_{sat}$ <sup>4</sup> :

$$\tau_{43} = \overbrace{\left(\frac{\Gamma}{\delta_{\omega 44}}\right)^2}^{F=4 \rightarrow F'=4} \left[\frac{7}{36}\right] \times \overbrace{\left[\frac{1}{6} \frac{11}{27}\right]^{-1}}^{F=4 \rightarrow F'=5} \times \overbrace{\left[\frac{5}{12}\right]}^{F'=4 \rightarrow F=3} = 1/1940 \quad (1.14)$$

Ceci signifie qu'un atome est "perdu" dans le sous niveau  $F = 3$  tous les 1940 cycles en moyenne. Pour corriger ce problème, on ajoute un laser accordé à résonance sur la transition  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  qui ramène les atomes dans le cycle.

## Effet Zeeman

Un champ magnétique statique interagit avec les moments magnétiques orbital et de spin de l'électron de valence des atomes que l'on veut refroidir. Ce couplage se traduit par un décalage en énergie des sous niveaux hyperfins. Pour la raie D2 de l'atome de césium, ce décalage est de l'ordre de 1,4 MHz par Gauss, à comparer aux 5 MHz de la largeur de raie de la transition. Cette interaction est employée en complément des forces radiatives dans de nombreux dispositifs d'optique atomique. Mais pour le refroidissement Doppler, le champ magnétique local dans le dispositif expérimental, de l'ordre du Gauss, induit un effet Zeeman indésirable. On s'attache donc généralement à compenser le champ magnétique dans la région d'interaction, à l'aide de trois paires de bobines de Helmholtz orientées selon trois directions orthogonales de l'espace.

<sup>4</sup>alors,  $s = 1/5$ , et la probabilité de transition vaut 1/6 de la probabilité à résonance

Une fois le champ magnétique compensé et le faisceau repompeur en place, l'obtention d'un bon refroidissement ne dépend plus que de la qualité des alignements optiques et des faisceaux laser. Nous avons vu qu'à la limite Doppler, la température des atomes était réduite à quelques centaines de  $\mu\text{K}$ . La vitesse moyenne des atomes est alors de quelques dizaines de centimètres par seconde.

### Températures sub-Doppler

Mais la limite Doppler n'est pas indépassable. En effet, l'influence d'un champ laser sur les degrés de liberté internes de l'atome peut diminuer encore la température. En particulier, l'effet Sisyphes, formalisé par J. Dalibard et C. Cohen-Tanoudji [11], repose le déplacement de niveaux induit par l'interaction dipolaire entre un champ laser stationnaire et l'atome. Selon l'orientation du moment dipolaire dans l'état fondamental, le niveau de cet état sera abaissé ou augmenté dans les nœuds de l'onde stationnaire. Un atome dans l'état fondamental se déplace donc dans une variation de potentiel sinusoïdale selon l'axe de propagation de l'onde stationnaire. Cette variation est décalée d'une demi-période selon l'état de spin de l'atome. Avec la bonne configuration de polarisation des faisceaux contre-propageants, l'absorption d'un photon est favorisée lorsque l'atome est en haut d'une colline de potentiel et la désexcitation successive a lieu préférentiellement dans l'état de spin opposé, donc dans un creux de potentiel. À chaque cycle, l'atome perd l'énergie cinétique nécessaire pour monter la colline, la descente par pompage optique se faisant sans modification nette de cette énergie. L'énergie ainsi dissipée permet de diminuer la température jusqu'à la limite où la quantité de mouvement de l'atome est égale à celle d'un photon. La vitesse associée est appelée vitesse de recul :

$$v_r = \frac{\hbar k}{m} = 3,52 \text{ mm.s}^{-1}$$

et correspond à une température  $T_r = 158 \text{ nK}$ . Remarquons que l'effet Sisyphes a systématiquement lieu dans une mélasse optique pour une configuration correcte des polarisation et sera observé dans notre dispositif. Nous verrons que la limite Doppler est en effet dépassée, sans toutefois atteindre la limite de recul.

Cette limite aussi peut être dépassée par des méthodes de refroidissement sélectif en vitesse [4], à l'aide de dispositifs lasers et magnétiques plus complexes, que nous ne détaillerons pas ici.

Après cet aperçu rapide des méthodes de refroidissement, nous allons considérer le deuxième aspect de l'interaction atome/laser, qui repose sur l'interaction dipolaire entre le champ incident et le dipôle induit dans l'atome. Cette interaction se traduit aussi par une force.

### 1.3.2 Force dipolaire

On a vu que la pression de radiation était basée sur l'accumulation de cycles absorption – émission spontanée. L'énergie emportée par les photons de fluorescence permet de diminuer l'énergie cinétique des atomes, cette force est dissipative. La force dipolaire est par contre conservative et peut s'exprimer sous la forme d'un gradient de potentiel.

Classiquement, un atome peut être considéré comme un oscillateur harmonique chargé. Le champ électrique du rayonnement crée un dipôle induit dans l'atome. Le moment dipolaire est

proportionnel à l'amplitude du champ :

$$\mathbf{p} = \chi(\omega_L)\mathbf{E}(t) \quad (1.15)$$

À cette interaction est donc associée un potentiel  $U = -\mathbf{p}\mathbf{E}$ . Si le champ n'est pas spatialement homogène, on aura  $\nabla U \neq 0$ , et donc une force :

$$\mathbf{F}(x,y,z) = -\nabla U \quad (1.16)$$

Il est nécessaire de passer à une description semi-classique pour obtenir une expression rigoureuse de la polarisabilité de l'atome. On considère un atome à deux niveaux plongé dans un rayonnement de pulsation  $\omega_L = \omega_0 + \delta_\omega$ .

Les niveaux d'énergie des états fondamental ( $E_f$ ) et excité ( $E_e$ ) sont déplacés par l'interaction avec le champ électromagnétique, on parle de déplacement lumineux ou d'effet Stark dynamique[10]. Les énergies de ces nouveaux états sont données par :

$$E_1 = \frac{\hbar}{2} \left[ (\Omega^2 + \delta_\omega^2)^{1/2} - \delta_\omega \right] \quad (1.17)$$

$$E_2 = -\frac{\hbar}{2} \left[ (\Omega^2 + \delta_\omega^2)^{1/2} + \delta_\omega \right] \quad (1.18)$$

Loin de la résonance, pour  $\delta_\omega \gg \Omega$ , presque toute la population est dans l'état  $|1\rangle$  et cet état est presque identique à l'état fondamental  $|f\rangle$ , l'énergie de l'atome dans le champ est proche de  $\hbar\omega_0/(4\delta_\omega)$ . Si le désaccord est plus faible, les deux états sont peuplés, et il faut tenir compte de l'émission spontanée. Dans la limite où l'atome est en équilibre avec le rayonnement, c'est-à-dire que le temps caractéristique de l'interaction dipolaire est grand devant la durée de vie de l'état excité, on obtient le potentiel moyen :

$$U = -\frac{\hbar\delta_\omega}{2} \ln \left[ 1 + \frac{\Omega^2}{2\Omega + 4\delta_\omega^2 + \Gamma^2} \right] \quad (1.19)$$

Le paramètre de saturation s'écrit :

$$s = \frac{\Omega^2/2}{\Gamma^2/4 + \delta_\omega^2} \quad (1.20)$$

Donc, pour les faibles saturations,  $\Omega^2 \ll \Gamma^2/4 + \delta_\omega^2$  et l'expression 1.19 se réduit à :

$$U = \frac{\hbar\delta_\omega}{2} \ln(1 + s) \quad (1.21)$$

On en déduit l'expression de la force dipolaire :

$$\mathbf{F} = -\frac{1}{2}\hbar\delta_\omega\nabla s \frac{1}{1+s} \quad (1.22)$$

Cette force est attractive pour des désaccords négatifs (décalage vers le rouge), et répulsive pour des désaccords positifs. Ainsi, tout maximum ou minimum local d'un champ laser peut

se comporter comme un puits de potentiel pour les atomes. Soulignons à nouveau que, contrairement à la pression de radiation, c'est une force conservative, elle ne permet donc pas de dissiper l'énergie cinétique des atomes, donc de les refroidir. Elle est d'autre part proportionnelle au désaccord, quand la pression de radiation varie comme le carré du désaccord. Donc, on peut privilégier son action en employant des faisceaux de fréquence suffisamment loin de la résonance<sup>5</sup>. Ces caractéristiques font de la force dipolaire un outil de choix pour localiser des gaz d'atomes, toute figure d'interférence devenant un ensemble de pièges. Le taux d'absorption peut être très faible, ce qui est un atout majeur pour la stabilité des pièges obtenus. Mais les pièges dipolaires restent peu profonds par rapport à l'agitation thermique d'un gaz d'atomes à température ambiante<sup>6</sup> et le refroidissement par pression de radiation dans une mélasse optique ou dans un piège magnéto-optique reste indispensable.

## 1.4 Conclusion

Nous avons vu dans ce premier chapitre que le rayonnement laser était un formidable outil de contrôle des degrés de liberté d'un atome. Associé à des champs magnétostatiques, ce contrôle ne se limite pas à leurs degrés de liberté externes, et on sait préparer un gaz d'atomes dans un état quantique très précis. Les méthodes de refroidissement et de piégeage actuelles permettent de refroidir des alcalins jusqu'à ce qu'ils occupent tous le même état et forment un condensat de Bose Einstein. Après ce rappel des bases de la manipulation d'atomes par les forces radiatives, nous pouvons commencer la description du dispositif expérimental.

---

<sup>5</sup>Le désaccord peut aller jusqu'à une centaine de téraherz. Des lasers Nd :YAG à 1064 nm sont utilisés pour piéger des atomes de césium dans les expériences de condensation (au prix d'une puissance extrêmement élevée, plusieurs dizaines de Watts fortement focalisés).

<sup>6</sup>La profondeur d'un piège dipolaire réalisé en focalisant fortement un faisceau laser de quelques centaines de milliwatts décalés de quelques gigahertz de la résonance est de l'ordre de 1 millikelvin.

L'atome de césium		
m	Masse atomique	132,9 uma = 2,21 10 <sup>-25</sup> kg
I	Spin nucléaire	(7/2)
La transition électronique 6S <sub>1/2</sub> → 6P <sub>3/2</sub>		
λ	Longueur d'onde	852,35 nm (vide) – 852.11 (air)
hν <sub>0</sub>	Énergie de résonance	1.455 eV
τ	Durée de vie	30.5 ns
Γ	Largeur naturelle	2π 5,22 MHz
I <sub>sat</sub>	Intensité de saturation	1.1 mW.cm <sup>-2</sup>
Les lasers		
ω <sub>l</sub>	Pulsation	
δ <sub>ω</sub>	Désaccord par rapport à la résonance	
I <sub>l</sub>	Intensité	
w <sub>0</sub>	Diamètre en 1/e <sup>2</sup>	
z <sub>r</sub>	Longueur de Rayleigh	
Refroidissement Doppler		
v <sub>c</sub>	Vitesse de capture	4,42 m.s <sup>-1</sup>
T <sub>D</sub>	Température Doppler	124,39 μK
v <sub>d</sub>	Vitesse Doppler	8,82 cm.s <sup>-1</sup>
T <sub>r</sub>	Température de recul	198 nK
v <sub>r</sub>	Vitesse de recul	0,352 cm.s <sup>-1</sup>
Four		
n <sub>f</sub>	Densité dans le four	(cm <sup>-3</sup> )
P <sub>vs</sub>	Pression de vapeur saturante	(mBar)
T <sub>N</sub>	Température du tube	(°C)
T <sub>F</sub>	Température du réservoir	(°C)
T <sub>A</sub>	Température de l'arrière	(°C)
Jet		
n	Densité dans le jet	(cm <sup>-3</sup> )
F(v)	Distribution de vitesse de Maxwell-Boltzmann	
ℱ(v)	Distribution de vitesse dans le jet	
v̄	Vitesse moyenne	(m.s <sup>-1</sup> )
v <sub>q</sub>	Vitesse quadratique	(m.s <sup>-1</sup> )
ℓ	Libre parcours moyen	(m)
Φ	Flux total	(s <sup>-1</sup> )
I <sub>at</sub>	Intensité du jet	(s <sup>-1</sup> .sr <sup>-1</sup> )
f(θ)	Profil angulaire du jet	I <sub>at</sub> (θ)/I <sub>at</sub> (0)
ℰ	Densité de flux	(s <sup>-1</sup> .cm <sup>-2</sup> )
θ <sub>1/2</sub>	Divergence du jet à mi-hauteur	(radians)
θ <sub>r</sub>	Divergence résiduelle du jet refroidi	(radians)
am	Grandeurs avec la mélasse	
sm	Grandeurs sans la mélasse	
G <sub>ℰ</sub>	Gain en densité de flux de la mélasse	≡ ℰ <sub>am</sub> /ℰ <sub>sm</sub>
G <sub>Φ</sub>	Gain en flux de la mélasse	≡ Φ <sub>am</sub> /Φ <sub>sm</sub>
Géométrie		
a	Diamètre du tube de sortie du four	1,6 mm
L	Longueur du tube	38 mm
φ <sub>D</sub>	Diamètre du diaphragme entre les chambres 1 et 2	2,6 mm

TAB. 1.2: Définition des différentes grandeurs employées dans la partie I.



# Chapitre 2

## Vue d'ensemble du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental présenté ici a été conçu pour réaliser des expériences de lithographie et de dépôt direct sur de l'arséniure de gallium. Ces expériences nécessitent un flux important d'atomes pour minimiser les temps d'exposition et un vide très poussé (inférieur à  $10^{-10}$  mbar) dans le cas du dépôt direct pour se prémunir des pollutions par le gaz résiduel.

Ces deux exigences ont présidé à la conception du dispositif. Une vapeur de césium est produite par chauffage d'une ampoule de césium dans un four, relié au système de vide. Un flux important d'atomes nécessite une pression de vapeur importante à la source, et un débit important à sa sortie. Un système de vide à plusieurs chambres a donc été mis en place, le vide dans chaque compartiment étant de plus en plus poussé à mesure que l'on s'éloigne du four. Nous décrivons l'ensemble de ce système dans la première partie de ce chapitre (section 2.1). Nous avons pu obtenir un vide poussé de  $8 \cdot 10^{-11}$  mBar dans la dernière chambre du système, et un fonctionnement quotidien à  $10^{-8}$  mBar, avec des remises à l'air fréquentes. Nous verrons ensuite comment le tube allongé en sortie du four permet une première collimation mécanique du jet. Le jet est détecté, refroidi et manipulé par des faisceaux lasers. Nous décrivons les différents lasers employés et les systèmes d'asservissements qui les maintiennent dans le mode de fonctionnement souhaité et enfin le dispositif de mélasse optique mis en place.

## 2.1 Système de vide

### 2.1.1 Pompage

Le système de pompage est décrit dans la figure 2.1. À mesure que l'on s'éloigne du four, le vide est de plus en plus propre – puisqu'il n'y a plus que des pompes sèches après la première chambre – et de plus en plus poussé, jusqu'à la dernière chambre destinée aux expériences de dépôt sur les cristaux semi-conducteurs.

- Chambre 1
  - Pompage secondaire : pompe à diffusion d'huile Varian VHS-4 ( $1200 \text{ L}\cdot\text{s}^{-1}$ )
  - Pompage primaire : pompe à vanne rotative SD91-451 ( $5,6 \text{ L}\cdot\text{s}^{-1}$ ). Cette pompe est aussi reliée directement à la chambre pour assurer un premier pompage lors d'une

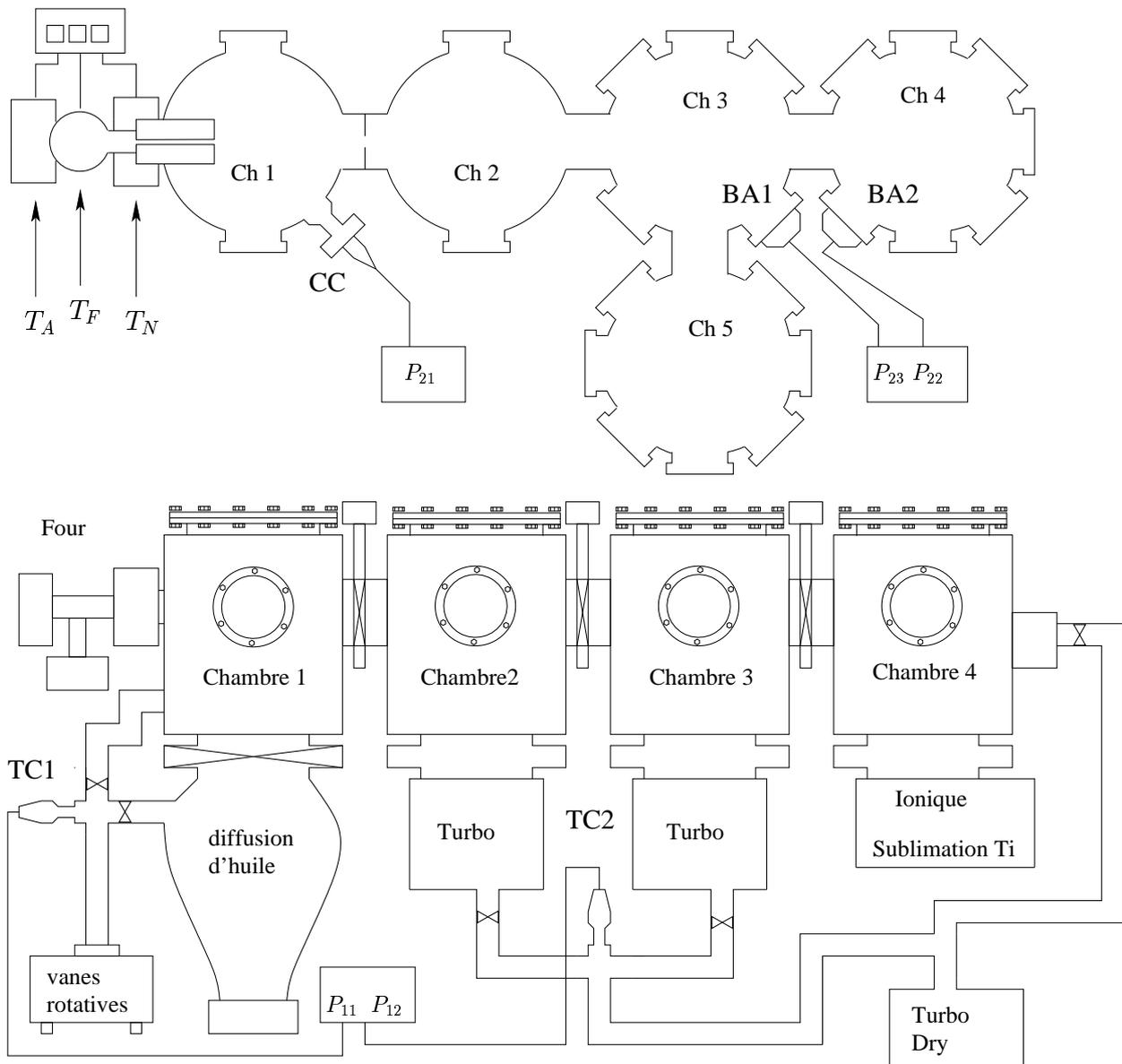


FIG. 2.1: Description du système de pompage du dispositif expérimental.

remise à l'air, avant de démarrer la pompe secondaire. Cependant, on évite de remettre cette chambre à l'air, le four n'étant pas isolé de cette chambre, on risque d'oxyder la réserve du césium. On peut l'allumer vers  $10^{-3}$  mBar.

- Chambre 2
  - Pompage secondaire : pompe sèche Turbo Varian V 550HT ( $300 \text{ L.s}^{-1}$ )
  - Pompage primaire : pompe Turbo Dry Varian 65 ( $60 \text{ L.s}^{-1}$ )
- Chambres 3 et 4
  - Pompage secondaire : pompes sèches Turbo Varian V 300HT ( $280 \text{ L.s}^{-1}$ )
  - Pompage primaire : pompe Turbo Dry Varian 65
 On peut allumer les turbos dès que la pression avoisine  $10^{-3}$  mBar.
- Chambre 4
  - Pompage secondaire courant : pompe ionique Varian StarCell
  - Pompage ultra vide (exceptionnel) : pompe à sublimation de titane Varian StarCell
  - Pas de pompage primaire en situation normale. La chambre est reliée à la pompe sèche Turbo Dry pour un pré-pompage en cas de remise à l'air. Il faut attendre que la pression ait atteint  $10^{-6}$  mBar avant d'allumer la pompe ionique.

Le diaphragme entre les chambres 1 et 2, en plus de sa fonction de collimation mécanique du jet de césium, permet de maintenir un vide différentiel.

### 2.1.2 Étuvage

L'étuvage est réalisé à l'aide de manteaux chauffants (Glas-Col) adaptés à la forme des différentes chambres, et permettant un chauffage homogène. La température est mesurée par des capteurs à thermocouples répartis sur le dispositif. À ces manteaux chauffants s'ajoutent des fils chauffants pour les pièces non recouvertes et l'étuvage intégré de la pompe ionique de la chambre 4.

### 2.1.3 Mesure et diagnostic

Position	Capteur	
Circuit primaire chambre 1	Thermocouple Varian ConvecTorr	TC1
Circuit primaire chambres 2,3 et 5	Thermocouple Varian ConvecTorr	TC2
Chambre 1	Cathode Froide Varian	CC1
Chambre 2	Cathode Froide Varian	CC2
Chambre 3	Jauge Bayer Alpert Varian UHV-24	BA1
Chambre 4	Jauge Bayer Alpert Varian UHV-24	BA2

TAB. 2.1: Capteurs de pression du dispositif

Un spectrographe de masse (SRS RGA 400) permet de plus d'analyser la composition du gaz résiduel dans la chambre 4. Cette analyse permet de maîtriser les étapes de pompage et d'étuvage pour atteindre le régime d'ultra-vide. Après un étuvage d'une semaine à environ  $150^\circ\text{C}$ , et cinq heures de fonctionnement de la pompe à sublimation de titane, nous avons obtenu un vide de  $8 \cdot 10^{-11}$  mBar. Les analyses du gaz résiduel montrent qu'il est constitué presque exclusivement d'hydrogène. Ce vide est suffisant pour les expériences de dépôt direct.

D'autre part, lors des expériences de lithographie, les remises à l'air d'une partie du dispositif sont fréquentes. Le système de pompage des chambres 2 et 3 permet d'obtenir une pression de quelques  $10^{-8}$  mBar en 30 minutes environ.

Nous allons maintenant détailler plus précisément le four de césium et le tube de sortie qui permet d'obtenir un jet directionnel se propageant à travers le dispositif.

## 2.2 Source de césium

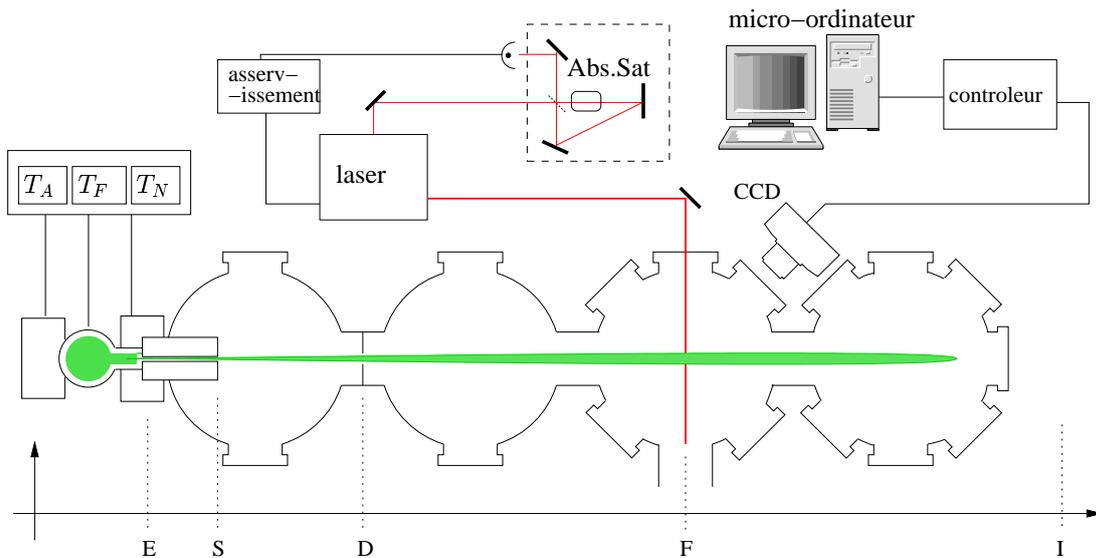


FIG. 2.2: Vue générale du jet atomique non-refroidi. La vapeur de césium est produite dans le four, effuse à travers le tube de sortie en S, le jet produit est diaphragmé après 250 mm de propagation par l'ouverture D de 2,6 mm de diamètre entre les chambres 1 et 2. On détecte les atomes par fluorescence dans la troisième chambre, en F, à 850 mm de la sortie du tube. Abs. Sat. : cellule d'absorption saturée

### 2.2.1 Chauffage

On introduit dans le four une cellule en verre contenant du césium (et un gaz tampon – de l'argon). Après fermeture, l'ampoule est brisée. La vapeur de césium dans le four est produite par chauffage de quatre colliers en cuivre traversés par des courants hachés. La température est mesurée par des capteurs à thermocouple de type K. On asservit les températures en trois points :  $T_A$  à l'arrière,  $T_F$  à hauteur de la cellule et  $T_N$  à l'avant, au moyen de trois contrôleurs STATOP (Chauvin Arnoux – modèle 4858), qui commandent les circuits de puissance alimentant les colliers chauffant, et permettent une régulation de la température à  $1^\circ\text{C}$  près. En règle générale, on a  $T_F < T_A < T_N$ , avec un écart de  $10^\circ\text{C}$ . La température plus basse dans le four assure qu'il n'y aura de dépôt de césium qu'à l'intérieur du four, pour prévenir le bouchage du tube de sortie.

Le point de fonctionnement normal du four a été fixé à  $T_F = 95^\circ\text{C}$ ,  $T_A = 105^\circ\text{C}$  et  $T_N = 115^\circ\text{C}$ , pour des raisons que nous détaillerons plus loin (§3.2.2). La pression dans le four, notée  $n_f$  est donnée par la pression de vapeur saturante à la température du réservoir  $P_{vs}$ . À  $95^\circ\text{C}$ , cette pression vaut  $0,5 \cdot 10^{-3}$  mBar. On en déduit la densité de césium dans le réservoir :  $n_f = P_{vs}/k_B T_F \simeq 1 \cdot 10^{13}$  at.cm<sup>-3</sup>. Les atomes de cette vapeur ont une distribution de vitesse  $F(v)$  de Maxwell-Boltzmann :

$$F(v)dv = \frac{2v^3}{v_q^4} \exp\left(-\frac{v^2}{v_q^2}\right) dv \quad (2.1)$$

Avec la vitesse quadratique  $v_q = \sqrt{2k_B T/m}$ . La température  $T$  est la température locale. On considère que les atomes sont à la température du nez  $T_N$  avant de sortir du four. On note  $\bar{v}$  la vitesse moyenne des atomes, avec  $\bar{v} = \sqrt{8k_B T/\pi m}$ .

A partir de cette vapeur, le tube de sortie permet d'obtenir un jet directionnel en sortie du four. Nous allons maintenant détailler ce mécanisme de collimation mécanique.

### 2.2.2 Effet du tube de sortie

Nous allons voir que le tube de sortie du four permet de concentrer les atomes sur l'axe  $z$ , c'est à dire d'augmenter la directionnalité du jet par rapport à un jet purement effusif que l'on obtiendrait avec une ouverture de faible épaisseur. Cette collimation mécanique permet en premier lieu d'avoir un vide plus propre dans la chambre 1 en dirigeant les atomes vers le diaphragme D et de diminuer ainsi la quantité de gaz à évacuer par la pompe à diffusion d'huile et la consommation totale de césium. D'autre part, elle permet de capturer une plus grande fraction d'atomes dans la mélasse, en diminuant leur composante de vitesse transverse. Idéalement, le tube devrait permettre de diriger tous les atomes dans un cône d'émission tel que leur vitesse transverse  $v_\perp$  soit inférieure à la vitesse de capture Doppler (voir le §1.3.1). Nous donnons ici quelques détails sur les effets attendus du tube, en s'appuyant sur les articles de D.C. Gray *et al.* [12], J.A. Giordmaine *et al.* [13] et de H.C.W. Beijerinck et N.F. Verster [14].

#### Définitions

Le tube et le diaphragme sont de symétrie circulaire. Hors du four, le libre parcours moyen  $\ell$  est toujours assez long pour que l'on soit dans le régime balistique, les trajectoires atomiques sont donc des lignes droites,<sup>7</sup> que l'on repère par leur angle polaire  $\theta$  par rapport à l'axe  $z$ , le problème est invariant par rapport à l'angle azimutal  $\varphi$ . On appelle  $\Phi$  le flux total d'atomes à travers le tube, c'est à dire le nombre d'atomes traversant le tube par unité de temps,  $\Phi$  est exprimé en s<sup>-1</sup>. Dans une direction donnée, l'intensité du jet  $I_{at}(\theta, \varphi) = I_{at}(\theta)$  est définie comme le nombre d'atomes par unité de temps par unité d'angle solide dans cette direction, exprimé en s<sup>-1</sup>str<sup>-1</sup>. Pour les expériences de lithographie ou de dépôt direct, on veut généralement connaître le nombre d'atomes par unité de surfaces et par unités de temps en un point donné du dispositif. Cette grandeur est appelée la densité de flux  $\mathcal{D}(x, y, z)$ , en s<sup>-1</sup>.cm<sup>-2</sup>. Le flux est

<sup>7</sup>Au bout du dispositif expérimental, à deux mètres du four, les atomes ne sont déviés que de quelques mm par la pesanteur.

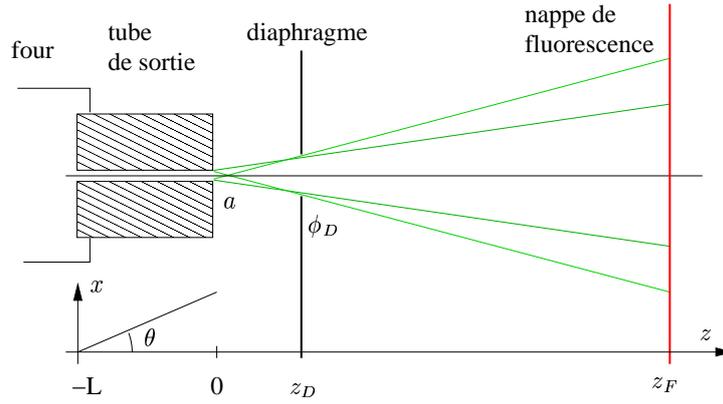


FIG. 2.3: Géométrie et trajectoires limites à travers le diaphragme D. Le tube de sortie du four fait  $L = 38$  mm de long et  $a = 1,6$  mm de diamètre. Le diaphragme D situé à une distance  $z_D = 250$  mm du bout du tube sépare les chambres 1 et 2 et fait  $\phi_D = 2,6$  mm de diamètre. La détection par une nappe de fluorescence est schématisée en F, à une distance  $z_F = 850$  mm de la sortie du four.

simplement l'intégrale de l'intensité sur  $2\pi$  stéradians, et l'intégrale de la densité de flux sur une section du jet. Soit :

$$\Phi = \int_0^{2\pi} I_{at}(\theta) d\Omega = \iint \mathcal{D}(x,y,z) dS \quad \text{d'où :} \quad (2.2)$$

$$\mathcal{D}(x,y,z) = I_{at}(\theta) \frac{d\Omega}{dS} \quad (2.3)$$

On définit d'autre part la densité  $n$  dans le jet, exprimée en  $\text{cm}^{-3}$ . On a  $\mathcal{D}(x,y,z) = n(x,y,z)\bar{v}$

### Jet effusif

On parle de jet effusif si le four est relié à la chambre par un trou d'épaisseur négligeable. Pour une ouverture de section  $a$ , le nombre d'atomes traversant l'ouverture par unité de temps, c'est-à-dire le flux  $\Phi$  est donné par :

$$\Phi = \frac{n_f \bar{v} \pi a^2}{4} \quad (2.4)$$

$$= \int_0^{2\pi} I_{at}(\theta) d^2\Omega = \int_0^{2\pi} I_{at}(0) \cos(\theta) d^2\Omega \quad (2.5)$$

La distribution de vitesse dans le four est isotrope, on déduit de l'expression du flux l'expression de l'intensité dans une direction  $\theta$  :

$$I_{at}(\theta) = \frac{\cos \theta}{4\pi} \frac{n_f \bar{v} \pi a^2}{4} \quad (2.6)$$

Schématiquement, du fait du tube de sortie, seules les trajectoires atomiques suffisamment proches de l'axe  $z$  peuvent traverser le tube, le profil angulaire  $f(\theta)$  de la source défini par  $f(\theta) = I_{at}(\theta)/I(0)$  est modifié par rapport au jet effusif où il vaut  $\cos \theta$ .

On distingue deux régimes d'écoulement à travers le tube (d'après le travail de J.A. Giordmaine et T.C. Wang [13]), selon le rapport d'aspect du tube et la pression de vapeur dans le four.

- Régime transparent : le libre parcours moyen  $\ell$  des atomes est grand devant la longueur et le diamètre du tube. Il n'y a pas de collisions inter-atomiques à l'intérieur du tube. La distribution angulaire du jet est alors déterminée par le rapport d'aspect du tube de sortie.
- Régime opaque : le libre parcours moyen est inférieur ou de l'ordre de la longueur du tube, et supérieur à son diamètre. Il y a des collisions inter-atomiques dans le tube, qui conduisent à une redistribution des vitesses. La partie utile à la collimation mécanique est réduite à la partie du tube dans laquelle la pression a diminué suffisamment pour qu'on retrouve la condition de régime transparent.

Nous nous situons à la transition de ces deux régimes. En effet, la pression de vapeur saturante  $P_{vs}$  est de  $2 \cdot 10^{-3}$  mBar à  $115^\circ\text{C}$  (température du tube de sortie), et de  $0,5 \cdot 10^{-3}$  mBar à  $95^\circ\text{C}$  (température de la réserve de césium). Le libre parcours moyen vaut respectivement 0,98 cm et 3,3 cm pour ces températures et  $\ell$  est donc comparable à la longueur du tube.

On peut comparer les valeurs de flux total et d'intensité sur l'axe dans les articles de J.A. Giordmaine [13] et D.C. Gray [12] pour les régimes transparent et opaque. Les applications numériques sont données à  $115^\circ\text{C}$ .

### Régime transparent

Dans le cas où il n'y a pas de collisions inter-atomiques dans le tube, l'intensité en  $\theta = 0$  ne dépend pas de la longueur du tube, et s'écrit toujours, d'après J.A. Giordmaine et l'équation précédente :

$$I_{at}(0)d\Omega = \frac{n_f \bar{v} a^2}{16} d\Omega = 1,4 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1} \cdot \text{str}^{-1} \quad (2.7)$$

Le flux total dépend par contre de la géométrie du tube :

$$\Phi = \frac{\pi}{4} \frac{n_f \bar{v} a^3}{3L} = \frac{a}{3L} \Phi_{\text{effusif}} = 2,5 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1} \quad (2.8)$$

À intensité sur l'axe constante, le flux total est donc diminué d'un facteur  $a/3L = 1/71$  par rapport au jet effusif, ce qui permet de limiter la consommation de césium, le travail de la pompe à diffusion d'huile de la chambre 1 et donc d'améliorer la qualité du vide et la propreté de la chambre.

D.C. Gray *et al.* [12] donnent une expression différente pour le flux :

$$\Phi = K P_{vs} \frac{\pi a^2}{4\sqrt{2\pi m k_B T}} = K \frac{\pi n_f \bar{v} a^2}{16} = 4,5 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1} \quad (2.9)$$

Dans cette dernière expression,  $K$  est le facteur de Clausing, qui tient compte de l'atténuation du flux du fait des collisions des atomes dans le tube. On a  $K \simeq (1 + 3L/8a)^{-1}$ .

Ces deux valeurs diffèrent d'un facteur 1,8. On peut considérer qu'elles fournissent un ordre de grandeur du flux total.

Une autre grandeur intéressante est la largeur à mi-hauteur de la distribution angulaire d'intensité, qui donne une idée de la collimation par le tube. Selon J.A. Giordmaine *et al.*, cet angle s'écrit :

$$\theta_{1/2} = 1,68 \frac{a}{2L} = 35 \text{ mrad} \quad (2.10)$$

Les équations 10 et 11 de l'article de T.C. Gray *et al.* permettent de calculer un angle à mi-hauteur de 44 mrad. La figure 2.4 donne en outre un tracé du profil angulaire  $f(\theta)$  prévu par les auteurs pour nos conditions expérimentales (toujours dans l'approximation du régime transparent). On remarque sur ce graphique que la distribution angulaire a des "pieds" non nuls et étendus. À flux constant, l'intensité sur l'axe optique serait 70 fois plus importante avec le tube que pour le jet effusif.

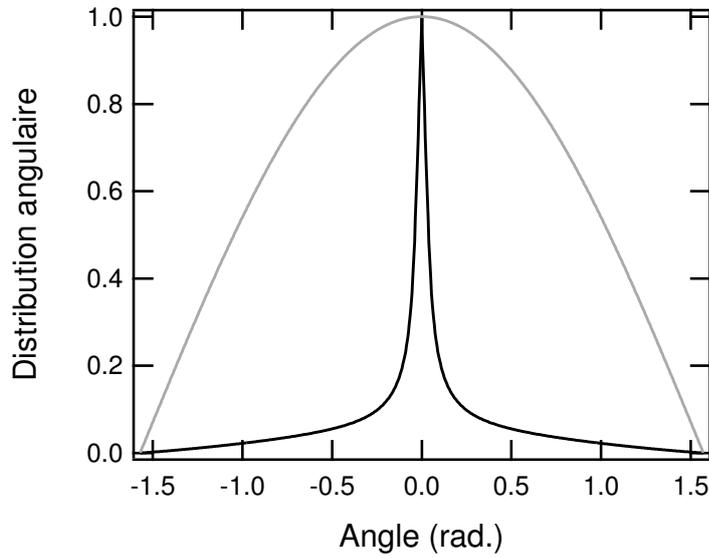


FIG. 2.4: Profil angulaire théorique à la sortie du four en régime transparent, selon [12]. En gris : pour un jet effusif, en noir pour notre tube de sortie. Les deux distributions sont normalisées par rapport à l'intensité sur l'axe du jet.

À partir de ces équations, on peut aussi déterminer la fraction du jet comprise dans un cône d'angle  $\vartheta$  donné, soit :

$$\frac{1}{A} \int_0^{\vartheta} f(\theta) \sin \theta d\theta \quad \text{avec} \quad A = \int_0^{\pi/2} f(\theta) \sin \theta d\theta \quad (2.11)$$

Cette fonction est tracée dans le graphique de la figure 2.5.

### Régime opaque

Selon J.A Giordmaine et T.C. Wang, l'équation (2.8) reste valide dans le cas du régime opaque, on a donc un flux total de l'ordre de  $10^{14} \text{s}^{-1} \cdot \text{str}^{-1}$ . La largeur à mi-hauteur de la distribution angulaire vaut selon ces mêmes auteurs :

$$\theta_{1/2} = \frac{2^{3/4} 3^{1/2} r_{Cs}}{1,78 (a\bar{v}/2)^{1/2}} \sqrt{\Phi} \simeq 46 \text{ mrad} \quad (2.12)$$

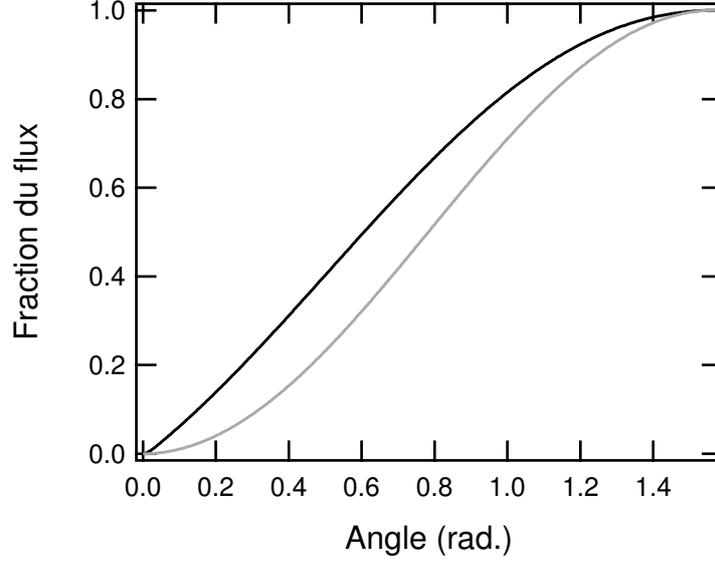


FIG. 2.5: Fraction du jet comprise dans un cône d'angle  $\vartheta$  en fonction de  $\vartheta$ . En gris : pour un jet effusif, en noir pour notre tube de sortie.

où  $r_{Cs} = 0,4$  nm est le rayon de l'atome défini par  $\pi r_{Cs}^2 = \sigma_{col}$ , où  $\sigma_{col}$  est la section efficace de collision. On obtient donc un plein angle de divergence à mi-hauteur proche de 40 mrad dans les deux approximations considérées.

### Distribution de vitesse

*A priori*, le tube de sortie du four modifie aussi la distribution de vitesse longitudinale dans le jet, par rapport à la distribution classique de Maxwell-Boltzmann notée  $F(v)$ . À la suite de D.C. Gray *et al.*, nous rendrons compte de cette modification en introduisant une fonction de correction  $\xi(v)$  dans la définition de la distribution de vitesse. C'est-à-dire :

$$\mathcal{F}(v)dv = \xi(v)F(v)dv = \xi(v)\frac{2v^3}{v_q^4} \exp\left(-\frac{v^2}{v_q^2}\right)dv \quad (2.13)$$

La vitesse moyenne  $\bar{v}$  est alors donnée par la relation :

$$\bar{v} = \frac{\int_0^{+\infty} v\mathcal{F}(v)dv}{\int_0^{+\infty} \mathcal{F}(v)dv} \quad (2.14)$$

Nous avons donné les caractéristiques prévues du jet produit par le tube de sortie. Le diaphragme D situé à 250 mm de la sortie du four va permettre de sélectionner la région centrale de cette distribution d'intensité. Seuls les atomes émis dans un cône d'angle  $\theta_D = \arctan(a + \phi_D/2z_D) = 8,4$  mrad traversent le diaphragme. Cet angle est petit devant les valeurs prévues de  $\theta_{1/2}$ , et on considérera toujours que la distribution d'intensité est constante dans ce cône, c'est-à-dire que  $f(\theta)|_{\theta < \theta_D} = \kappa$ . La constante  $\kappa$  traduira donc le gain d'intensité sur l'axe par rapport au jet effusif à flux constant.

En définitive, l'effet du tube de sortie est simplement une augmentation du flux d'un facteur  $\kappa$  sur l'axe du jet. La pré-collimation due au tube permettant en outre de capturer plus d'atomes dans la mélasse. (voir la section 3.3).

### 2.2.3 Après le diaphragme

N. Ramsey [3] donne la distribution de densité d'un jet effusif après collimation par deux diaphragmes mécaniques. Comme cela apparaît sur la figure 2.3, on obtient une distribution de densité de flux trapézoïdale selon un axe perpendiculaire à l'axe  $z$ . A une distance  $z$  donnée après le diaphragme, les grande et petite bases du trapèze valent respectivement  $2z \tan \theta_D + \phi_D = 8,4 \cdot 10^{-3} 2z + 2,6$  mm et  $2z \tan \theta_1 = 2 \cdot 10^{-3} 2z + 2,6$  mm, soit 12,6 mm et 5 mm respectivement à la hauteur de la nappe de détection (F) sur la figure 2.2, par exemple.

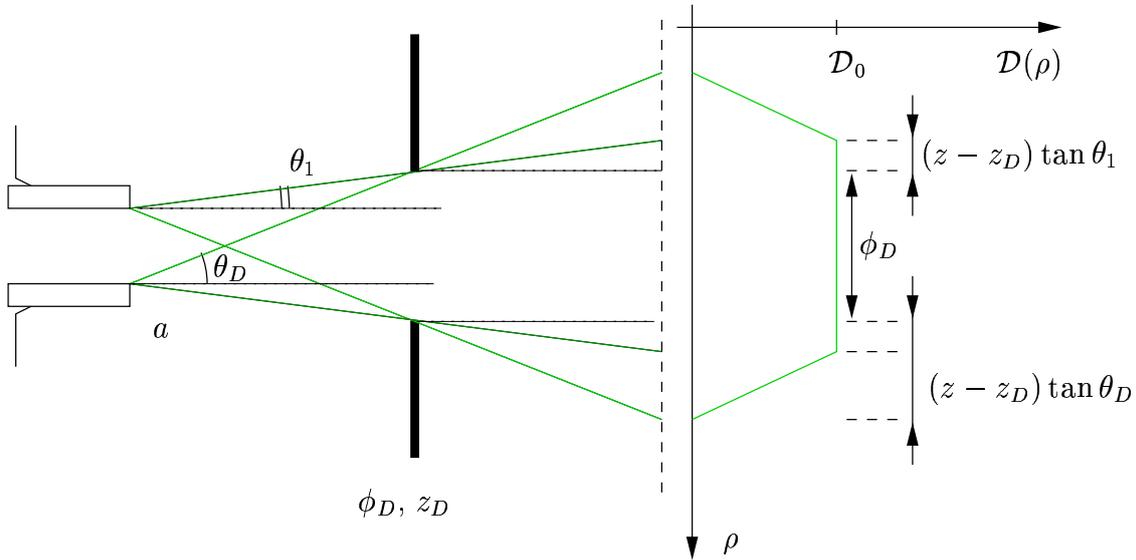


FIG. 2.6: Distribution d'intensité après le diaphragme.

Le tube de sortie du four permet donc d'obtenir un jet relativement collimaté. Nous vérifierons les prédictions de cette étude dans le chapitre consacré à la caractérisation expérimentale du jet (chapitre 3). Autres éléments essentiels du dispositif expérimental que nous avons développé, trois lasers sont employés pour détecter et manipuler les atomes. Nous décrivons ces lasers dans la prochaine section, ainsi que la méthode employée pour les asservir en fréquence.

## 2.3 Système laser, asservissements

Les faisceaux lasers interviennent à plusieurs reprises dans les expériences décrites ici. Deux diodes lasers sont nécessaires dans le dispositif de mélasse optique, la première pour le refroidissement transverse proprement dit, et la deuxième en tant que repompeur de  $F = 3$  vers  $F = 4$ . Un troisième laser a été employé pour des tâches très variées : pour la détection par fluorescence, la modulation de la densité par force dipolaire, et l'illumination des ouvertures sub-longueur

d'onde que nous décrirons dans la deuxième partie. Ces lasers sont décrits au paragraphe 2.3.1. Pour manipuler les atomes par des forces radiatives, on doit maîtriser précisément la fréquence absolue de ces différents faisceaux. Cette tâche est assurée par le système d'asservissement que nous décrivons au paragraphe 2.3.2.

### 2.3.1 Lasers utilisés

#### Mélasse optique

Pour réaliser la mélasse optique (voir le §3.3), on utilise deux diodes lasers, l'une pour le refroidissement proprement dit, l'autre pour le repompage des atomes du sous niveau  $F = 3$  au sous niveau  $F = 4$ ). Le laser de refroidissement est une diode (SDL 54-22-H1-852) de 100 mW en cavité Littrow (voir la figure 2.7, le laser de repompage une diode DBR (SDL 57-12-H1-850) de 50 mW en cavité étendue. On contrôle le mode de fonctionnement de ces diodes par trois paramètres :

- La température interne de la diode est fixée et asservie par un contrôleur (LFI 3551 – Wavelength Electronics). On fixe aussi la température du châssis par une plaque à effet Peltier pour éviter les dilatations de la cavité étendue.
- Le courant de la diode, asservi par notre système, est utilisé pour les corrections rapides par le système d'asservissement et peut éventuellement être modulé pour obtenir le signal d'erreur (voir §2.3.2).
- La longueur de la cavité étendue est contrôlée *via* un cristal piézoélectrique placé sur le réseau ou le miroir de ré-injection. Ce réglage est utilisé pour balayer la fréquence du laser sur plusieurs centaines de MHz, et pour les corrections lentes ( $< 100$  Hz) de l'asservissement.

En sortie de ces deux diodes, on place un (pour le repompage) ou deux (pour le refroidissement) isolateurs optiques (OFR IO-5-852-HP). Tous les faisceaux sont en effet rétro-réfléchis par les différentes surfaces optiques et la qualité spectrale de ces lasers, ainsi que leur stabilité, sont extrêmement sensibles à la ré-injection. Dans le cas du laser de repompage, un isolateur n'est pas tout-à fait suffisant, et on "voit" de la ré-injection si un faisceau est très bien rétro-réfléchi. Par contre, l'alignement du repompeur n'est pas un paramètre critique, on désaligne donc un peu le faisceau pour pallier aux problèmes de ré-injection.

#### Détection, force dipolaire, laser à tout faire...

Nous disposons d'un troisième laser utilisé principalement pour l'imagerie, mais aussi dans les études de focalisation par onde stationnaire, ou encore pour l'optique sub-longueur d'onde. Il s'agit d'un laser commercial MOPA (pour *Master Oscillator Parametric Amplifier*), fabriqué par Toptica Photonics (modèle TA 100). Il est composé de deux diodes, et fonctionne sur le principe maître/esclave. La première diode de faible puissance a une faible largeur de raie grâce à une cavité Littrow. Elle impose par pompage optique le mode laser de la deuxième diode, qui est fortement amplifié. Ce laser délivre une puissance nominale de 500 mW. Les asservissements en température et en courant sont intégrés au boîtier de contrôle.

Tous ces lasers sont asservis sur différentes transitions de la raie D2 du césium grâce à la spectroscopie d'absorption saturée décrite au §1.2.2 et à la méthode de modulation démodula-

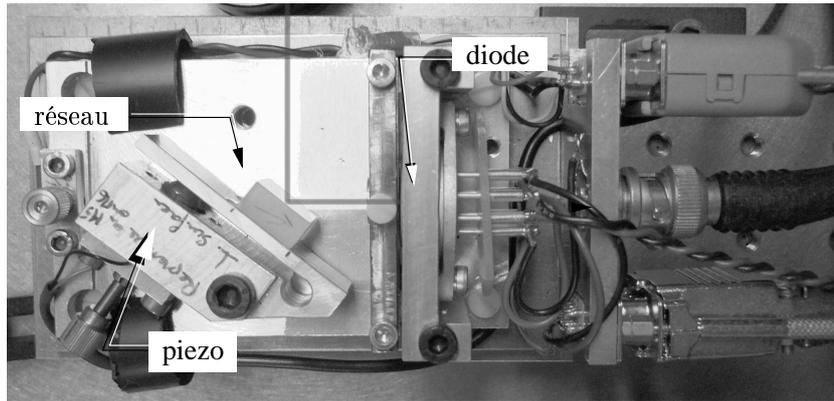


FIG. 2.7: Photo de la diode de refroidissement en cavité étendue

tion que nous allons décrire maintenant.

### 2.3.2 Asservissement

On a vu au §1.2.2 que la spectroscopie par absorption saturée permettait d'obtenir un spectre comportant un pic pour chaque transition entre deux états hyperfins et des pics "surnuméraires" correspondant aux croisements de niveaux. L'asservissement que nous présentons ici permet de maintenir le laser au sommet d'un de ces pics d'absorption saturée – dont on connaît la fréquence absolue – par un dispositif de modulation-démodulation.

La figure 2.8 montre le montage de spectroscopie par absorption saturée de la diode de refroidissement. Le schéma de principe de l'asservissement est donné sur la figure 2.9

Un faisceau laser prélevé sur le faisceau principal est modulé en fréquence *via* le courant de la diode ou un modulateur acousto-optique. Au voisinage d'un pic d'absorption saturée, le signal mesuré par la photodiode à la fréquence de modulation est proportionnel à la dérivée de la forme de raie. Par démodulation et filtrage, on obtient un signal d'erreur nul au centre du pic, et proportionnel à l'écart de fréquence du laser à la fréquence de transition  $\omega_0$  choisie comme référence.

Plus formellement, on note  $G_{PD}$  la sensibilité de la photodiode (en  $V.mW^{-1}$ ). Le signal mesuré par la photodiode en l'absence de modulation s'écrit :

$$V(t) = G_{PD} I_{abs}(\omega)$$

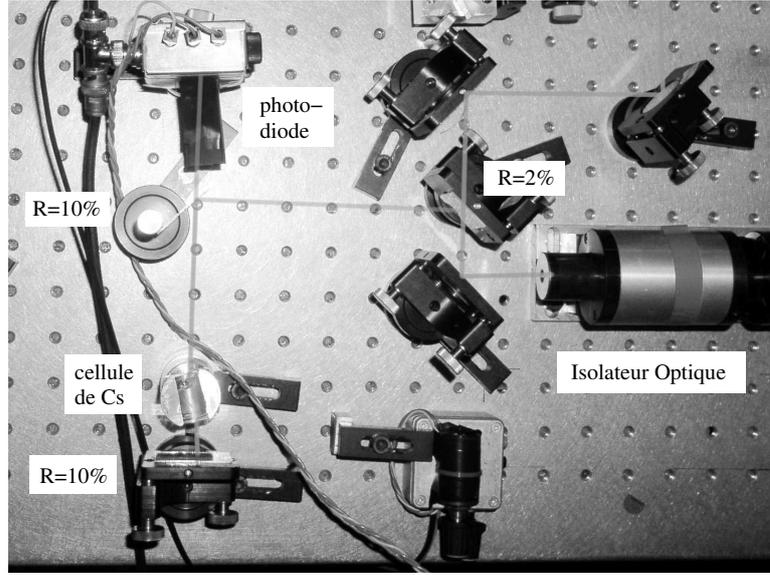


FIG. 2.8: Image du dispositif de spectroscopie par absorption saturée de la diode de refroidissement.

On module à la fréquence  $\Omega_m$ , avec une amplitude  $\delta_m \Rightarrow$

$$\begin{aligned} V &= G_{PD} I_{abs}(\omega + \delta_m \cos \Omega_m t) \\ &\simeq G_{PD} \left[ I_{abs}(\omega) + \frac{\partial I_{abs}(\omega)}{\partial \omega} \delta_m \cos \Omega_m t \right] \quad \text{si } \delta_m < \Gamma \end{aligned}$$

On démodule  $\Rightarrow \times \cos(\Omega_m t)$

$$\begin{aligned} S_{dm} &= G_{DM} \left[ I_{abs}(\omega) \cos \Omega_m t + \delta_m \frac{\partial I_{abs}(\omega)}{\partial \omega} \cos^2(\Omega_m t) \right] \\ &= G_{DM} \left[ \frac{1}{2} \frac{\partial I_{abs}(\omega)}{\partial \omega} + I_{abs} \cos \Omega_m t + \frac{1}{2} \frac{\partial I_{abs}(\omega)}{\partial \omega} \cos 2\Omega_m t \right] \end{aligned}$$

on filtre  $\Rightarrow f_c \ll \frac{\Omega_m}{2\pi}$

$$S_\varepsilon = \frac{G_A \delta_m}{2} \frac{\partial I_{abs}}{\partial \omega} \quad \text{soit, au voisinage de } \omega_0$$

$$S_\varepsilon = \frac{G_A \delta_m}{2} \frac{\partial^2 I_{abs}(\omega_0)}{\partial \omega^2} (\omega - \omega_0)$$

Ainsi, on obtient par cette méthode un signal d'erreur proportionnel à l'écart à la fréquence de la transition ou du croisement de niveau choisi comme référence. Les schémas électriques des divers composants de l'asservissement sont donnés en annexe. Une fois ce signal généré, on envoie sa composante basse fréquence ( $< 100$  Hz) vers le pilote du cristal piézoélectrique, et sa composante haute fréquence (entre 100 Hz et 200 Hz, fréquence de coupure de l'asservissement) vers le pilote de courant de la diode.

La fréquence de coupure de l'asservissement en courant est proche de 200 Hz. On projette d'augmenter cette fréquence pour corriger les bruits à plus haute fréquence. Une des principales sources de bruit du dispositif provient des pompes sèches dont les pales tournent à 56 000

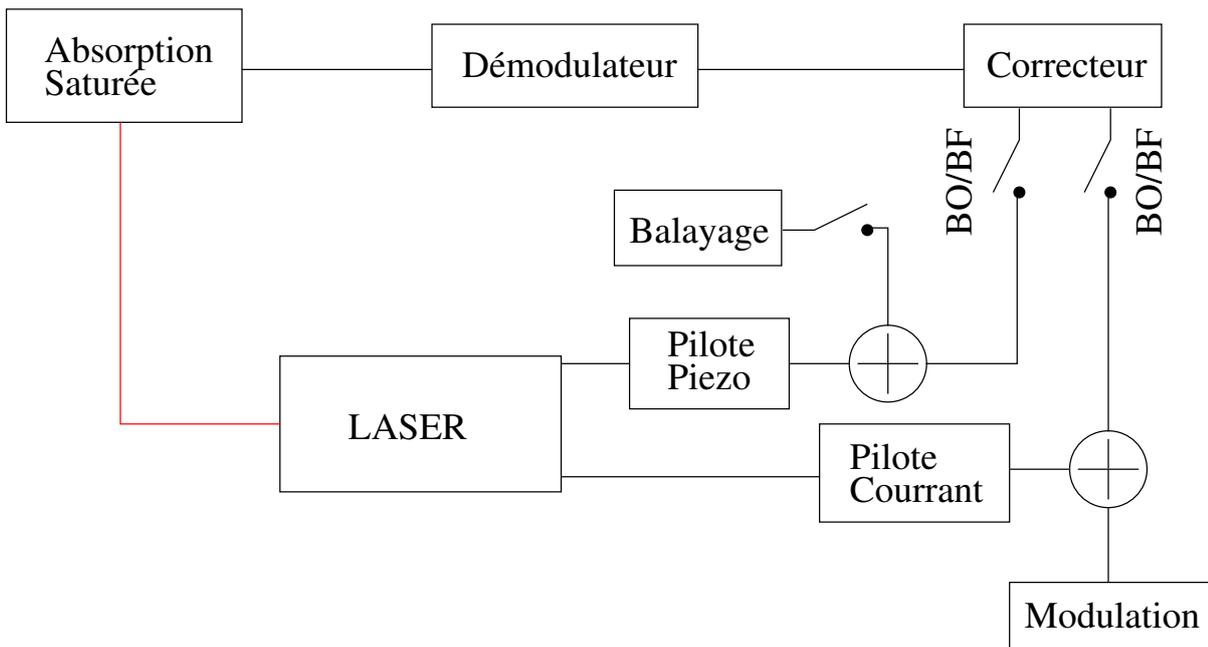


FIG. 2.9: Schéma de principe de l'asservissement. BO : Boucle ouverte, BF : Boucle fermée. Le pilote du cristal piézo-électrique corrige les composantes basses fréquences du signal d'erreur, le pilote de courant les composantes hautes fréquences.

tours/minute, ce qui produit un parasite à 900 Hz qui n'est pas corrigé.

Ces asservissements sont toutefois très stables et performants. Une mesure, à l'aide d'un analyseur de spectre, des battements entre deux faisceaux issus de la diode de refroidissement et du MOPA, nous a permis de mesurer des largeurs de raie inférieures à  $1 \text{ MHz} < \Gamma/2\pi$ , ce qui est suffisant pour nos applications.

Enfin, le dernier élément essentiel de notre dispositif est le détecteur qui nous permettra de caractériser le jet de césium obtenu. Le paragraphe suivant décrit rapidement la caméra employée et la méthode de détection.

### 2.3.3 Détection

#### Caméra CCD

Nous utilisons une caméra CCD Princeton TEA 512. Le capteur est une matrice de  $512 \times 512$  pixels rétro-éclairés. Une cellule à effet Peltier permet de refroidir le détecteur à  $-50 \text{ }^\circ\text{C}$ . On obtient ainsi un courant d'obscurité inférieur à  $0,1 \text{ e}^- \cdot \text{s}^{-1}$ . La caméra est interfacée à un ordinateur *via* le contrôleur ST138. Les pilotes et l'interface graphique Winview sont fournis par le constructeur.

L'efficacité quantique nominale du détecteur à 852 nm est de 0,69 électrons/photons. Le taux de conversion est de 2 coups par photon. Pour l'imagerie du jet, nous utilisons un objectif de focale fixe 90 mm (N.A=2,8). L'entrée de l'objectif est placée à 22 cm de la zone d'interaction entre le faisceau et la nappe de détection. La résolution des images est de 18 pixels/mm, soit

un grandissement de 2,3. Le champ de vue dans le plan focal objet est un carré de 28,5 mm de côté.

### Nappe de fluorescence

On réalise une image de l'interaction du jet avec une nappe laser accordée à résonance sur la transition  $6S_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6P_{3/2}, F' = 5$ , et se propageant selon l'axe  $x$ . Si on néglige l'effet Doppler associé aux composantes de vitesse transverses dans le jet, le signal obtenu est proportionnel à la densité atomique dans le jet et en régime linéaire à l'intensité laser. Si la vitesse moyenne dans le jet est fixée, ce signal est aussi proportionnel à la distribution de densité de flux.

Cette nappe de fluorescence doit être plus large que le jet selon  $y$  et suffisamment fine selon  $z$  pour ne pas être gêné par la profondeur de champ finie du système d'imagerie. Pour cela, on réalise un faisceau étendu à l'aide d'un télescope, et on place une fente de 1 mm de large avant l'entrée du laser dans le système de vide. Le faisceau obtenu à des largeurs en  $1/e^2$  de 12 mm selon  $x$  et 1 mm selon  $y$ . On travaille à des intensités proches de  $I_{sat}$ , de l'ordre de quelques  $\text{mW.cm}^{-2}$ .

Le temps de pause usuel est de 0,5 secondes, avec un signal de l'ordre de 1000 coups par pixels, permettant un suivi quasi-continu des caractéristiques du jet au cours d'une expérience. Ceci permet par exemple d'optimiser en temps réel le dernier élément de notre montage expérimental, la mélasse optique, dont nous allons détailler maintenant le dispositif.

## 2.4 Mélasse optique

On a vu au chapitre 1 que la pression de radiation permettait de réduire la vitesse d'un atome selon l'axe de propagation de deux faisceaux contre-propageants. La collimation par mélasse optique applique cette méthode sur les deux directions perpendiculaires à l'axe de propagation des atomes. Les vitesses transverses sont amorties, on diminue donc la divergence du jet. Dans une première version du dispositif expérimental, la mélasse optique était réalisée dans la chambre 2 du système de vide, après le diaphragme D. Le seul effet de la nappe était alors la collimation du jet, sans changement du flux total. Nous avons par la suite modifié le dispositif expérimental et placé la mélasse dans la première chambre, immédiatement après le tube de sortie. Dans cette configuration, la mélasse permet non seulement d'améliorer la collimation du jet, mais aussi de ramener des atomes sur l'axe de propagation et à travers le diaphragme, ce qui augmente le flux total dans les chambres suivantes.

### 2.4.1 Optique

Le dispositif de mélasse optique est représenté sur la figure 2.10. Les deux sources laser sont asservies en fréquence par la méthode déjà décrite (§2.3.2). Pour la diode de refroidissement, le faisceau d'asservissement traverse un modulateur acousto-optique qui permet de décaler la fréquence du laser par rapport à la fréquence d'asservissement, donnée par le pic d'absorption saturée du croisement de niveaux  $(F = 4 \rightarrow F' = 5)/(F = 4 \rightarrow F' = 4)$ . Ce pic est situé à 128 MHz de la transition  $6S_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6P_{3/2}, F' = 5$ , et le modulateur impose un décalage

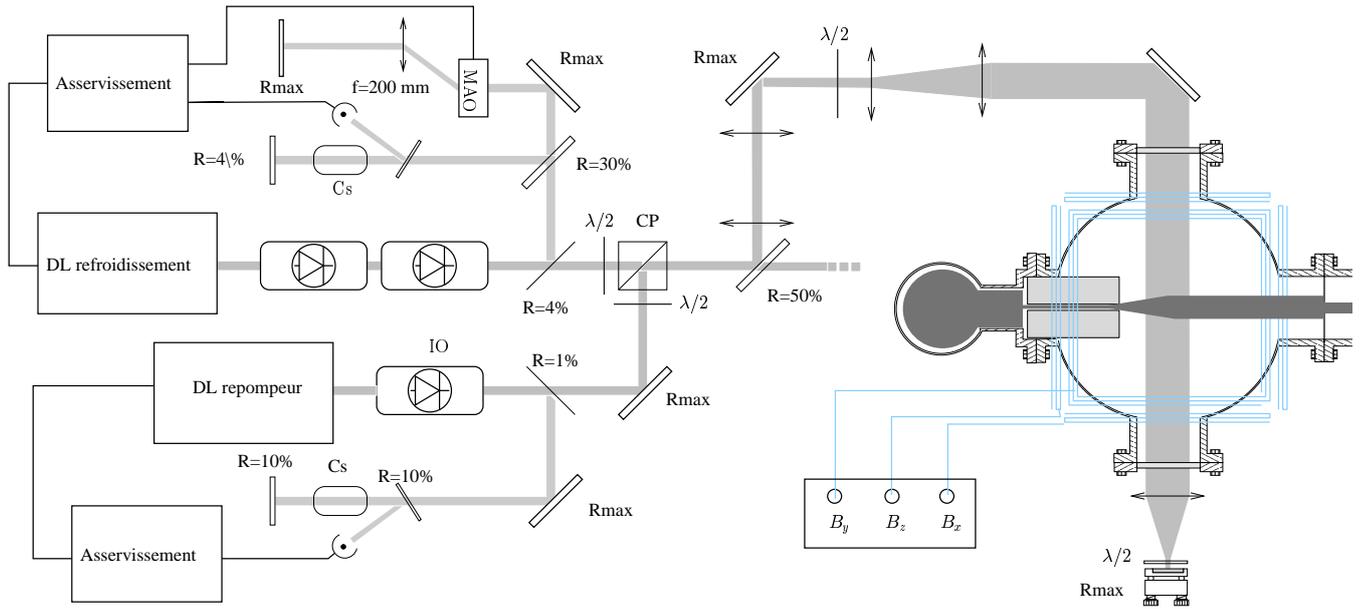


FIG. 2.10: Dispositif détaillé de la mélasse optique à 2D. Seul le bras horizontal est représenté. CP : cube polariseur ; IO : isolateur optique ; MAO : modulateur acousto optique

de l'ordre de  $2 \times 60$  MHz. Le laser de refroidissement est ainsi décalé de quelques MHz vers le rouge de la transition. Le faisceau de repompage est directement asservi sur la transition  $6S_{1/2}, F = 3, \rightarrow 6P_{3/2}, F' = 4$ . Les deux faisceaux sont ensuite superposés sur un cube polariseur. Le faisceau obtenu est divisé en deux par une lame séparatrice pour former les bras horizontal et vertical de la mélasse. Chacun de ces bras est mis en forme séparément.

Le bras horizontal traverse un télescope formé par deux lentilles cylindriques pour donner un faisceau elliptique, puis un deuxième télescope permettant d'obtenir un faisceau de  $40 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$  (pleines largeurs en  $1/e^2$ ). Ce faisceau est ensuite amené à hauteur du jet par deux miroirs de  $50 \text{ mm} \times 12,5 \text{ mm}$ . Après avoir traversé le jet de césium, le faisceau est re-focalisé par une lentille, et un miroir placé au point focal permet de le rétro-réfléchir pour former le deuxième faisceau de la mélasse horizontale. Devant le miroir de retour, on place une lame  $\lambda/4$ . Le faisceau réfléchi est donc polarisé perpendiculairement au faisceau direct. On a ainsi obtenu une zone d'interaction horizontale de  $40 \text{ mm}$  selon l'axe du jet  $z$ , en configuration  $\text{lin} \perp \text{lin}$ , qui doit éventuellement permettre de refroidir les atomes par effet Sisyphes (voir le §1.3.1).

La construction du bras vertical ne permet pas d'obtenir une zone d'interaction aussi large (voir la figure 2.11). Le miroir de retour du faisceau vertical est en effet placé sous vide, maintenu par une potence à la bride fermant l'enceinte. Ce miroir ne fait que  $25 \text{ mm}$  de diamètre et limite la taille du bras vertical. Celui-ci est donc simplement collimaté par un télescope de lentilles cylindriques. On obtient un faisceau de  $20 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ .

La puissance du laser de refroidissement est répartie également entre ces deux bras, qui font chacun  $32 \text{ mW}$  avant d'entrer dans la chambre. Deux lames  $\lambda/2$  placées après la lame séparatrice permettent d'orienter correctement la polarisation de chacun des faisceaux.

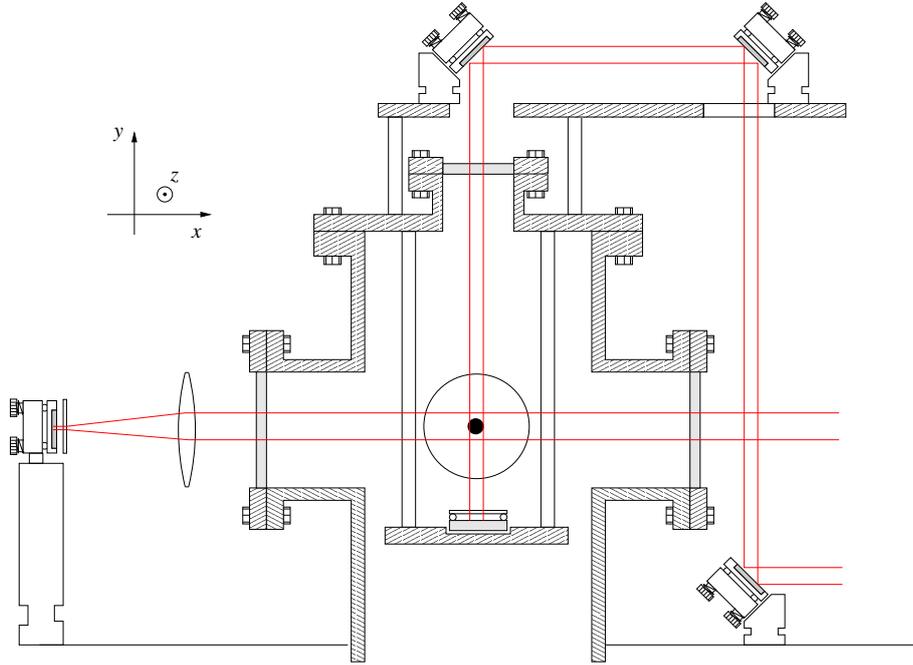


FIG. 2.11: Schéma de la région d'interaction et des bras horizontal et vertical de la mélasse. Pour le bras vertical, la taille du miroir de retour limite la taille du faisceau.

## 2.4.2 Champ magnétique

Dernier élément du dispositif de mélasse optique, trois paires de bobines de Helmholtz permettent de régler le champ magnétique local dans la zone d'interaction – dû essentiellement à la structure en acier qui supporte le dispositif expérimental. Ces bobines sont constituées de 20 tours de fils de cuivre de 200 mm de diamètre alimentés par des sources régulées en courant (TTi PL310). Les champs produits sont de l'ordre de 0,7 Gauss pour un courant de 1 Ampère.

On règle le courant dans ces bobines en mesurant le champ à l'aide une sonde à effet Hall, en cherchant à annuler récursivement le champ selon les trois axes. Une mesure en l'absence de courant dans les bobines donne un champ au centre de la chambre valant :

$$B = \begin{pmatrix} B_x \\ B_{b1} \\ B_{b2} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -0,9 & G \\ -0,5 & G \\ 0,44 & G \end{pmatrix}$$

Où  $b1$  et  $b2$  désignent les bissectrices du plan  $(y,z)$ . Les gradients du champ ambiant sont en outre tous de l'ordre de  $20 \text{ mG.cm}^{-1}$ . Le décalage Zeeman de deux sous-niveaux hyperfins de l'atome de césium est de l'ordre de 1,4 MHz par Gauss, qu'il faut comparer avec la largeur de raie naturelle de la transition, 5 MHz.

Après compensation, on trouve un champ résiduel de

$$B = \begin{pmatrix} -0,02 & G \\ -0,03 & G \\ 0,02 & G \end{pmatrix}$$

Correspondant à des courants dans les bobines de -947, -782 et 217 mA respectivement pour les axes  $x$ ,  $y$  et  $z$ .

Avec cette compensation, on a un décalage par effet Zeeman de l'ordre de quelques dizaines de kHz, négligeable devant la largeur de raie de la transition et la largeur spectrale des lasers. Remarquons enfin que les bobines de compensation de champ sont considérées comme un degré de liberté supplémentaire pour optimiser la mélasse et les courants employés sont réglés plus finement au cours du réglage de la mélasse, après l'alignement de l'optique et l'optimisation du désaccord du laser de refroidissement.

### 2.4.3 Conclusion

Bruno Viaris et moi-même avons assemblé les différents éléments présentés ci-dessus au cours des deux premières années de ma thèse. Cela nous a permis d'obtenir une source de césium reproductible dont nous allons maintenant présenter les caractéristiques.

# Chapitre 3

## Caractérisation du jet et de la mélasse optique

### 3.1 Introduction

Nous donnons dans ce chapitre les caractéristiques physiques du jet de césium. Celles-ci ont évolué au cours des expériences rapportées par la suite, du fait d'une modification importante du dispositif expérimental en septembre 2003, où nous avons déplacé la mélasse optique de la chambre 2 à la chambre 1, et de diverses modifications mineures survenues pendant les années suivantes. Les mesures données ici ont été réalisées en octobre 2005.

Nous décrivons dans une première section les caractéristiques du jet non-refroidi, c'est-à-dire en l'absence de mélasse optique. On s'intéresse aux caractéristiques dont nous avons parlé au §2.2 : le flux  $\Phi$ , l'intensité sur l'axe  $I_{at}(0)$  et le profil angulaire  $f(\theta)$ , la densité de flux  $\mathcal{D}(x,y,z)$ , et la distribution de vitesse longitudinale  $\mathcal{F}(v)$ , après le diaphragme D. À la date où a été réalisée la caractérisation du jet, la densité de flux sur l'axe optique à hauteur des échantillons valait  $8 \cdot 10^{11} \text{ at.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$ . Pour augmenter le flux, et pour diminuer la divergence du jet, de l'ordre de 4 mrad, nous avons mis en place une mélasse optique. Les conditions d'opération de cette mélasse et ses performances sont données dans la deuxième section de ce chapitre. En fonctionnement courant, elle permet un gain en densité de flux d'un facteur 7 au centre du jet, toujours à hauteur des échantillons, soit  $\mathcal{D}(0,0,z_F) = 5 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$ . La divergence à mi-hauteur après le refroidissement est inférieure à 1 mrad.

Nous indiquerons en conclusion quelles sont les améliorations possibles de ce dispositif expérimental.

### 3.2 Jet non refroidi

En premier lieu, la figure 3.2 donne un exemple d'image du jet détecté par fluorescence. La caméra CCD fait un angle de  $45^\circ$  avec la nappe de fluorescence (voir la figure 3.1). On évite dans cette configuration d'imager la région de la mélasse optique, très brillante, et qui produit un fond important. Sur les images obtenues, les dimensions selon  $x$  doivent donc être corrigées d'un facteur  $\sqrt{2}$ .

L'intensité du faisceau d'imagerie est de l'ordre de l'intensité de saturation, le temps de pose

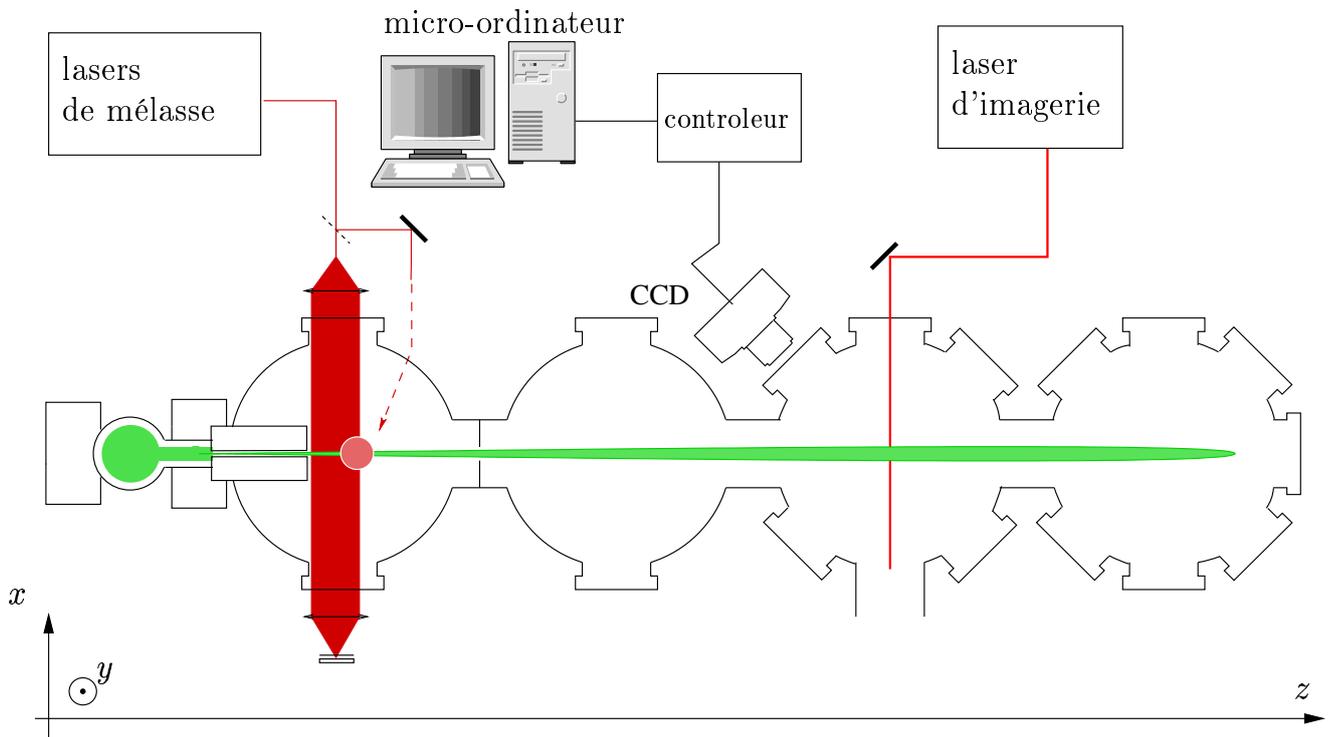


FIG. 3.1: Schéma des différentes parties du dispositif

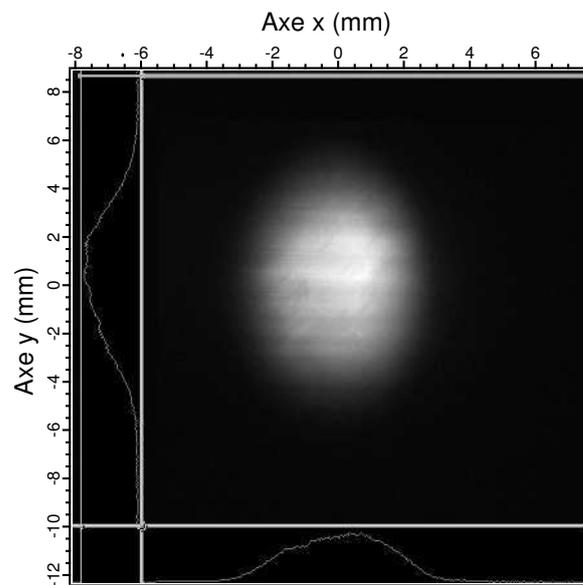


FIG. 3.2: Exemple d'image de fluorescence, jet non-refroidi.

est de 0,5 secondes. On a soustrait un fond de quelques 100 coups par pixels. On obtient un signal maximum de 1300 coups et un bruit de l'ordre de 10 coups par pixels.

En intégrant le signal sur une bande de 10 pixels au centre de l'image du jet selon  $y$  et  $x$  on obtient les coupes horizontale (selon  $x$ ) et verticale (selon  $y$ ), rapportées sur la figure 3.3.

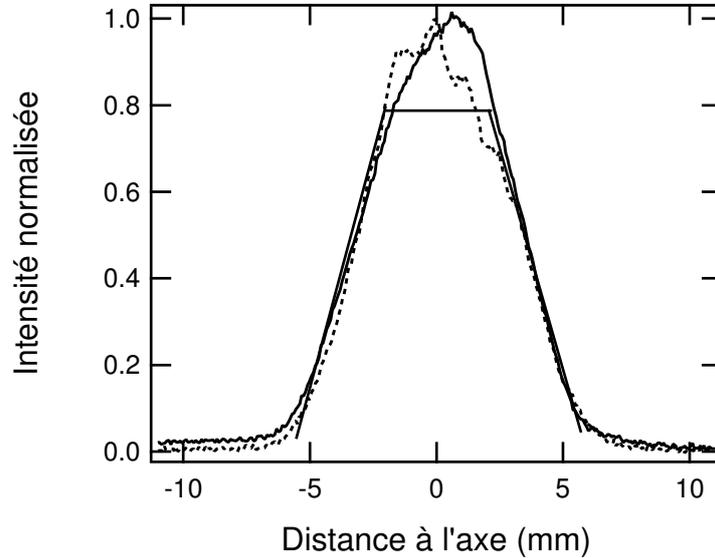


FIG. 3.3: Coupes du jet non-refroidi à partir de l'image de la figure 3.2. Traits pleins : coupe horizontale (selon  $x$ ), pointillés : coupe verticale (selon  $y$ ). Les lignes droites en traits pleins donnent la distribution prévue au chapitre précédent.

La distribution relative de densité dans le jet ainsi obtenue peut être modélisée par un trapèze de révolution, comme prévu par N. Ramsey [3]. La distribution réelle s'écarte de ce trapèze à cause de la modification d'intensité due au tube de sortie. Cependant, pour simplifier les calculs par la suite, on considèrera que la distribution de densité de flux est donnée par le trapèze en traits pleins sur la figure 3.3.

Mais, pour déterminer la densité de flux  $\mathcal{D}$ , on doit connaître, en plus de la distribution relative de densité, la vitesse moyenne dans le jet et avoir une mesure absolue de la densité moyenne. La distribution de vitesse peut être déterminée par la méthode que nous détaillons maintenant.

### 3.2.1 Distribution de vitesse – Analyse Doppler

La distribution de vitesse longitudinale dans le jet s'écrit :

$$\begin{aligned} \mathcal{F}(v) &= \xi(v).F(v) \\ &= \xi(v).\frac{2}{v_q}\left(\frac{v}{v_q}\right)^3 \exp(-(v/v_q)^2) \end{aligned} \quad (3.1)$$

où la fonction  $\xi(v)$  décrit la modification de vitesse longitudinale dans le jet (voir §2.2.2). Pour mesurer cette distribution de vitesse longitudinale, on éclaire le jet avec un faisceau incliné d'un

angle  $\theta$  ( $45^\circ$ ) par rapport à l'axe  $z$ . Par effet Doppler, une classe de vitesse longitudinale<sup>8</sup>  $v$  sera résonante avec le laser pour un désaccord  $\delta_\omega$  tel que :

$$v(\delta_\omega) = \frac{\delta_\omega}{k_L \sin \theta} \quad (3.2)$$

La variation de l'intensité de fluorescence en fonction de  $\delta_\omega$  permet donc de déterminer la distribution de vitesse. On réalise une série de mesures du taux de fluorescence avec le faisceau à  $45^\circ$  en modifiant le désaccord  $\delta_\omega$ .

## Expérience

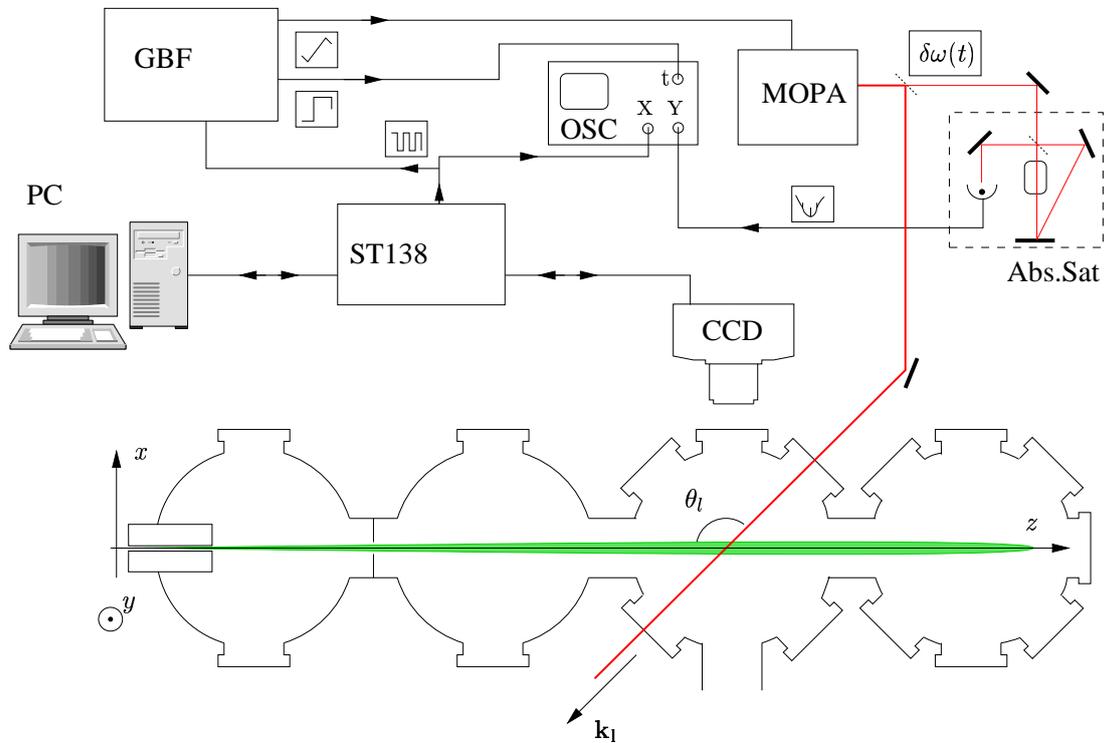


FIG. 3.4: Dispositif de caractérisation de la distribution de vitesse longitudinale du jet. OSC : oscilloscope, PC : micro-ordinateur, MOPA : laser d'imagerie, CCD : caméra, ST138 : contrôleur de la caméra, Abs. Sat. : spectroscopie par absorption saturée.

L'expérience est décrite dans la figure 3.4. La caméra est pilotée par l'ordinateur via le contrôleur ST138. On programme une série de  $n$  images, avec un temps de pose  $\Delta t$ . Une sortie BNC du contrôleur donne l'état de l'obturateur de la caméra (haut : obturateur fermé, bas : obturateur ouvert). Lorsqu'on lance l'acquisition, ce signal déclenche le générateur de fonction arbitraire (BF). En sortie du BF, une rampe de tension de durée  $n\Delta t$  est envoyée sur le piézo du MOPA, ce qui a pour effet de modifier la fréquence de sortie du laser. Pendant le temps

<sup>8</sup>On néglige la dispersion de vitesse transverse, la divergence après le diaphragme étant inférieure à 5 mrad.

de montée de la rampe de fréquence, les  $n$  images sont enregistrées. On enregistre en outre sur l'oscilloscope (OSC) le spectre d'absorption saturée et le signal en créneaux émis par le contrôleur ST138. On peut ainsi déterminer *a posteriori* à quelle fréquence a été prise chaque image.

Conditions typiques :

- Réglage sous Winview : pose 0.6 s, une accumulation, correction de fond,  $n = 50$  images.
- BF Agilent 33120A : fréquence = 10 mHz, Amplitude = 250 mV pk-pk, mode burst, burstcount = 1, burst phase = 90, déclenchement externe
- Nappe laser : puissance 5 mW, faisceau elliptique de  $20 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ , polarisation rectiligne.

## Résultats

On a réalisé l'expérience décrite ci-dessus pour différentes températures. Pour chaque image, le signal est intégré sur une région de  $20 \times 20$  pixels au centre du jet. Le désaccord mesuré sur le spectre d'absorption saturé est converti en vitesse d'après la relation (3.2).

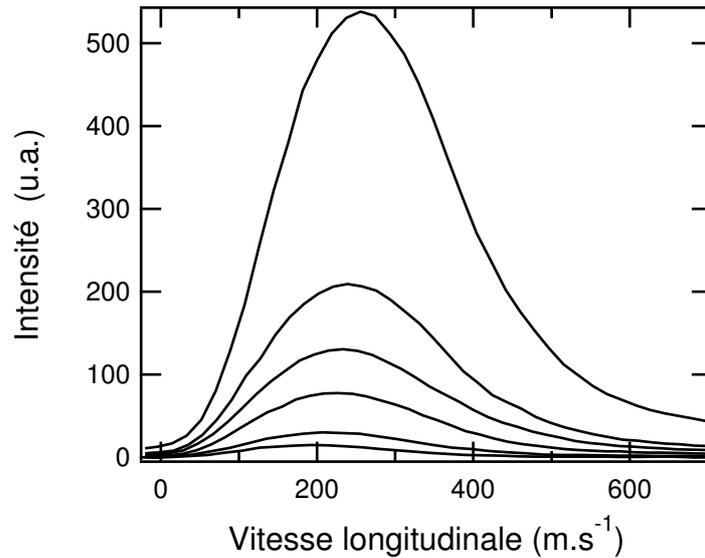


FIG. 3.5: Distribution longitudinale de vitesse du jet non-refroidi,  $T_N = 45, 55, 75, 85, 95$  et  $115 \text{ °C}$ .

Ces distributions de vitesse sont bien décrites par des distributions maxwelliennes, ce qui revient à considérer le terme  $\xi(v)$  constant dans l'équation (3.1). En théorie, on a  $v_q = \sqrt{2k_B T/m}$ . Les valeurs obtenues par ajustement d'une fonction  $A v F(v)$  aux courbes ci-dessus donnent des valeurs en bon accord avec cette valeur théorique, dans la limite de résolution du dispositif, comme on peut l'observer sur le graphique de la figure 3.6. Dans ce graphique, les valeurs de la vitesse maximale sont directement mesurées sur les distributions, et les valeurs de  $v_q$  sont obtenues par l'ajustement.

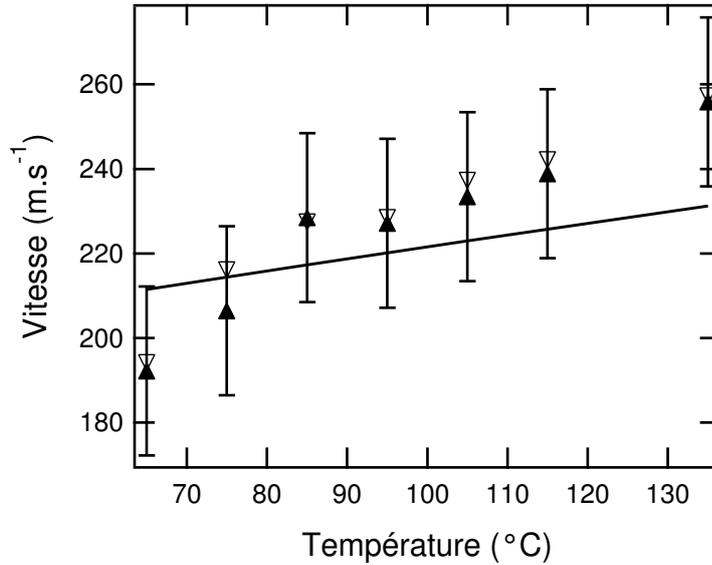


FIG. 3.6: Vitesse maximale et largeur de la distribution de vitesse en fonction de la température. Triangles pleins : vitesse maximale ; triangles vides : largeur de la distribution  $v_q$ , trait plein : valeur théorique de  $v_q$ .

### 3.2.2 Flux

On cherche à avoir une mesure absolue du flux atomique du jet, ou du moins un ordre de grandeur, en fonction principalement des températures du four.

La caméra CCD est peu adaptée à cette mesure. Le signal mesuré dépend en effet de la géométrie du faisceau et de la polarisation réelle du laser, qui entraîne des effets de pompage optique. Une méthode plus directe, et donc plus facilement calibrée, consiste à faire une mesure en absorption. On mesure simplement la puissance absorbée par le jet dans un faisceau laser qui le traverse, en balayant sa fréquence autour de la résonance. On utilise pour cela le dispositif expérimental décrit sur la figure 3.2.2

La mesure est réalisée au niveau de la chambre 2, soit à 200 mm du diaphragme.

On met en forme, grâce à un télescope, un faisceau large polarisé rectilignement qui traverse le jet atomique, et dont on balaye la fréquence autour de la résonance. On mesure à l'aide d'une photodiode la puissance transmise à travers le jet en fonction du désaccord. Le diaphragme calibré permet d'une part de connaître le volume d'interaction entre la laser et le jet et de s'assurer que l'intensité est dans une bonne approximation constante dans la région d'interaction considérée.

Le signal détecté correspond à la puissance absorbée par le jet, sur lequel on peut ajuster une fonction lorentzienne (voir la figure 3.8). La profondeur de ce signal correspond à la puissance absorbée par les atomes à résonance dans le volume délimité par le diaphragme dans le plan  $(y, z)$  et par la section du jet selon l'axe  $x$ . En réalisant la mesure d'absorption pour différentes puissances du faisceau sonde, on peut tracer la courbe de saturation de cette portion du jet.

Un ajustement des données expérimentales par une fonction  $P(I) = P_\infty 1/(1 + I_{sat}/I)$  qui correspond à l'expression de la saturation pour un atome à deux niveaux est donné en trait plein sur la figure 3.9. Cette approximation est ici valide dans la mesure où les atomes rayonnent

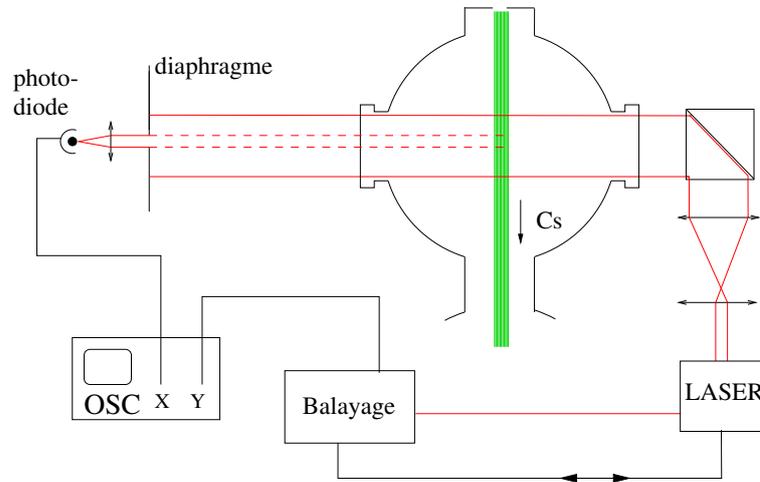


FIG. 3.7: Schéma de principe de la mesure d'absorption. Un faisceau laser dont on balaye la fréquence traverse le jet. Le diaphragme permet de mesurer l'absorption au centre du faisceau.

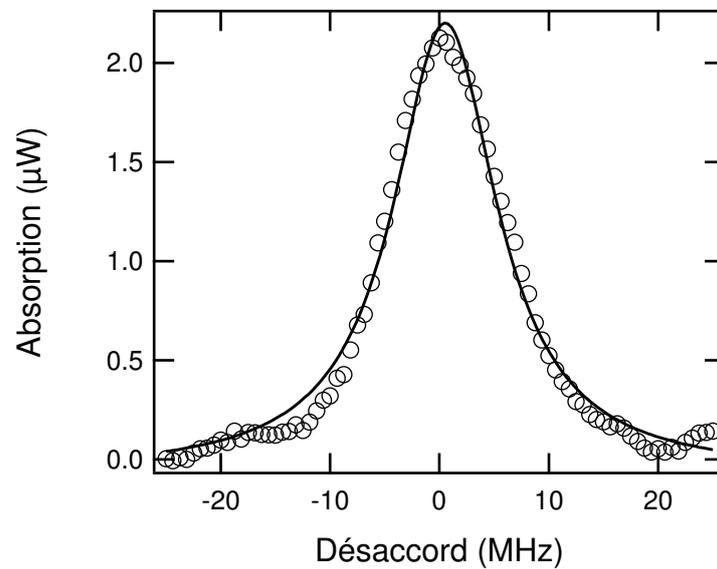


FIG. 3.8: Exemple de signal d'absorption mesuré. L'intensité du laser vaut  $2,8 \text{ mW}\cdot\text{cm}^{-2}$  et  $T_F = 205 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $T_N = 225 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $T_A = 215 \text{ }^\circ\text{C}$

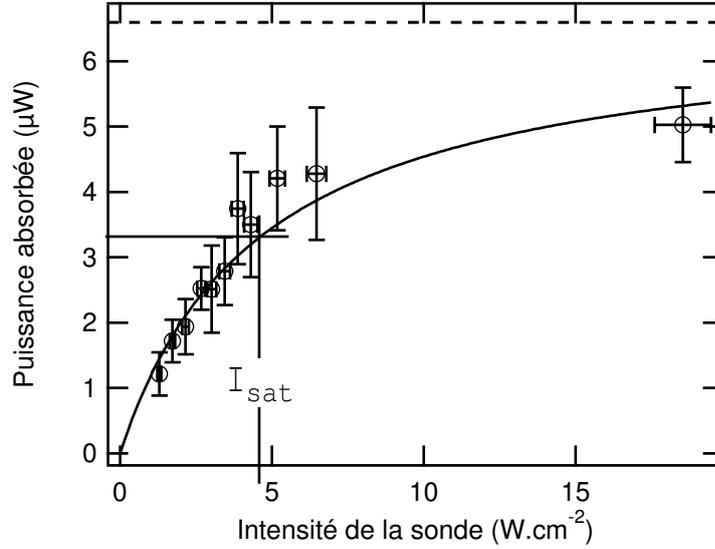


FIG. 3.9: Courbe de saturation obtenue pour un jet non-collimaté.  $T_F = 205\text{ °C}$ ,  $T_N = 225\text{ °C}$ ,  $T_A = 215\text{ °C}$

un nombre assez important de photons pour être considérés en équilibre avec le rayonnement (le temps d'interaction est de l'ordre de  $40\text{ }\mu\text{s}$ , et  $2\pi/\Gamma \simeq 60\text{ ns}$ ). On déduit deux paramètres de cette mesure :

- Sa valeur asymptotique, c'est-à-dire la puissance absorbée par les atomes dans le volume d'interaction à saturation. Cette valeur permet de déterminer le nombre d'atomes détectés, et donc la densité dans le jet.
- La valeur *effective* de l'intensité de saturation.

Dans le cas de la courbe de la figure 3.9, on obtient  $I_{sat} = 4,6\text{ W.cm}^{-2}$  et  $P_\infty = 6,7\text{ }\mu\text{W}$ . L'intensité de saturation théorique est donnée par l'expression :

$$I_{sat} = \frac{27}{11} \frac{2\pi^2 c \hbar}{3\tau \lambda_0^3} = 2,7\text{ mW.cm}^{-2}$$

Le facteur 27/11 provenant des coefficients de Glebsh-Gordan pour la transition et la polarisation considérée (voir la discussion sur ce point au §1.2.1). Cette valeur est plus faible que la valeur mesurée. L'écart est sans doute dû des effets de pompage optique, du fait notamment de la mauvaise maîtrise de la polarisation du laser.

Cependant, à saturation, un atome émet un photon à  $852\text{ nm}$  toutes les  $64\text{ ms}$  (cette valeur dépend uniquement de la durée de vie de l'état excité, et non de la polarisation employée) ; soit une puissance absorbée de  $3,5\text{ pW}$  par atome. Ainsi, on a détecté  $6,7 \cdot 10^{-6} / 3,5 \cdot 10^{-12} = 1,9 \cdot 10^6$  atomes.

Le volume d'interaction vaut  $4,8\text{ mm}^3$ , on a donc une densité (moyennée selon  $x$ ) dans le jet de  $6,8 \cdot 10^8\text{ cm}^{-3}$  pour une température du tube de sortie de  $205\text{ °C}$  en  $z = 450\text{ mm}$ . Cette mesure permet de calibrer la détection par fluorescence avec la caméra CCD. On réalise une mesure du signal de fluorescence du jet en fonction de la température du four. On obtient la courbe de la figure 3.10.

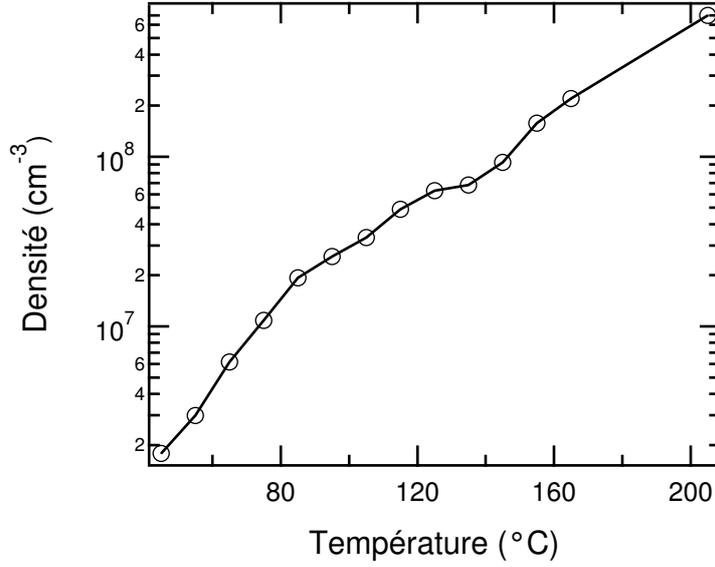


FIG. 3.10: Densité mesurée à la caméra et calibrée par absorption en fonction de la température du four.

La mesure de la densité de flux moyenne  $\mathcal{D}_m$  est donnée en combinant la mesure de densité atomique et la mesure de distribution de vitesse.

$$\mathcal{D}_m = n\bar{v} \quad (3.3)$$

Pour une température de four de 115°, on a une vitesse moyenne de 250 m.s<sup>-1</sup> et une densité<sup>9</sup> de 2.6 10<sup>4</sup> mm<sup>-3</sup>, et donc une densité de flux de 6,5 10<sup>11</sup> s<sup>-1</sup>.cm<sup>-2</sup> en moyenne sur une section du jet en  $z = 450$  mm.

Pour connaître le flux total et la densité de flux au centre du jet, on s'appuie sur la distribution spatiale de densité prévue par N. Ramsey (voir le §2.2.3) et dont on a vérifié la relative validité par la mesure de fluorescence (figure 3.3). La distribution de densité de flux est donc modélisée par un trapèze de révolution, de grande base  $b = 6$  mm, et de petite base  $a = 3,4$  mm. En coordonnées polaires dans le plan de la nappe, on a donc :

$$\mathcal{D}(\rho, \theta) = \mathcal{D}(\rho) = \begin{cases} \mathcal{D}_0 & \text{si } 0 \leq \rho < a/2 \\ \mathcal{D}_0 \left( \frac{b-\rho}{b-a} \right) & \text{si } a/2 \leq \rho < b/2 \\ 0 & \text{si } \rho \geq b/2 \end{cases} \quad (3.4)$$

Le flux total est donné par :

$$\Phi = \int_0^{+\infty} \int_0^{2\pi} \mathcal{D}(\rho, \theta) \rho \sin \theta \, d\theta \, d\rho = \frac{\pi \mathcal{D}_0}{12} [2b^2 + 2ab - a^2] \quad (3.5)$$

On a aussi :

$$\Phi = \int_0^{+\infty} \int_0^{2\pi} \mathcal{D}_m(\rho, \theta) \rho \sin \theta \, d\theta \, d\rho = \frac{\pi b^2}{4} \mathcal{D}_m \quad (3.6)$$

<sup>9</sup>déterminée à partir de la calibration à 205 °C et de la mesure de flux en fonction de la température

Les équations (3.5), (3.4) et (3.6) permettent de déterminer  $\Phi$  et  $\mathcal{D}_0$  à partir de la mesure de  $\mathcal{D}_m$ . On obtient :  $\Phi \simeq 2 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$  et  $\mathcal{D}_0 \simeq 7 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$  en  $z = 450 \text{ mm}$ . L'intensité sur l'axe optique vaut donc :  $I_{at}(0) = \mathcal{D}_0 z^2 = 1,4 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ . Les calculs de la section 2.2.2 prévoyaient une intensité sur l'axe de  $1,5 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ , en bon accord avec la mesure.

Le tableau 3.1 donne les valeurs de ces différentes grandeurs au niveau de la nappe de fluorescence, où auront généralement lieu les expériences de lithographie pour lesquelles l'évaluation du flux est intéressante.

$\Phi$	=	$2 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$
$I_{at}(0)$	=	$1,5 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$
$\mathcal{D}_0$	=	$2 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$

TAB. 3.1: Valeurs du flux, de l'intensité sur l'axe et de la densité de flux au niveau de la nappe de fluorescence (en  $z = 850 \text{ mm}$ ), pour une température du four  $T_F = 95^\circ$ .

Comme nous allons le voir dans la prochaine section, la mise en place d'une mélasse optique à deux dimensions permet d'améliorer ces performances.

### 3.3 Jet refroidi

Nous verrons dans cette section que la mélasse optique mise en place dans la chambre 1 et décrite au chapitre précédent (§2.4) permet de gagner un facteur sept sur l'intensité du jet sur l'axe optique, et de ramener la divergence du jet à moins de 1 mrad.

Nous détaillerons ensuite les caractéristiques du jet de césium obtenu après le refroidissement : flux, divergence et distribution de vitesse, avant de conclure sur les améliorations possibles de ce dispositif.

#### 3.3.1 Image de fluorescence

La figure 3.11 montre les images par fluorescence du jet sans et avec la mélasse optique. Les conditions sont les mêmes que pour l'image de la figure 3.2. Pour l'image du jet refroidi, le signal maximal est de 7000 coups, le bruit de 10 coups par pixels. Le jet refroidi est dissymétrique, la distribution de densité étant plus étroite selon l'axe horizontal, indiquant un meilleur refroidissement dans cette direction. Comme précédemment, on réalise des coupes de cette image selon les axes  $x$  et  $y$ . Ces coupes sont rapportées sur la figure 3.12

La dissymétrie du refroidissement, apparente sur l'image par fluorescence, est évidente en observant les coupes verticales et horizontales. La distribution verticale de densité est peu modifiée, et on a un net effet de refroidissement sur l'axe horizontal. Cette dissymétrie peut être due à deux différences entre les deux bras. :

- la différence de longueur d'interaction des bras vertical et horizontal. La taille du faisceau de refroidissement vertical ne semble pas permettre un refroidissement efficace selon cette dimension. D'autre part, le miroir de retour étant fixé, la latitude d'alignement de ce faisceau est réduite par rapport au faisceau horizontal.

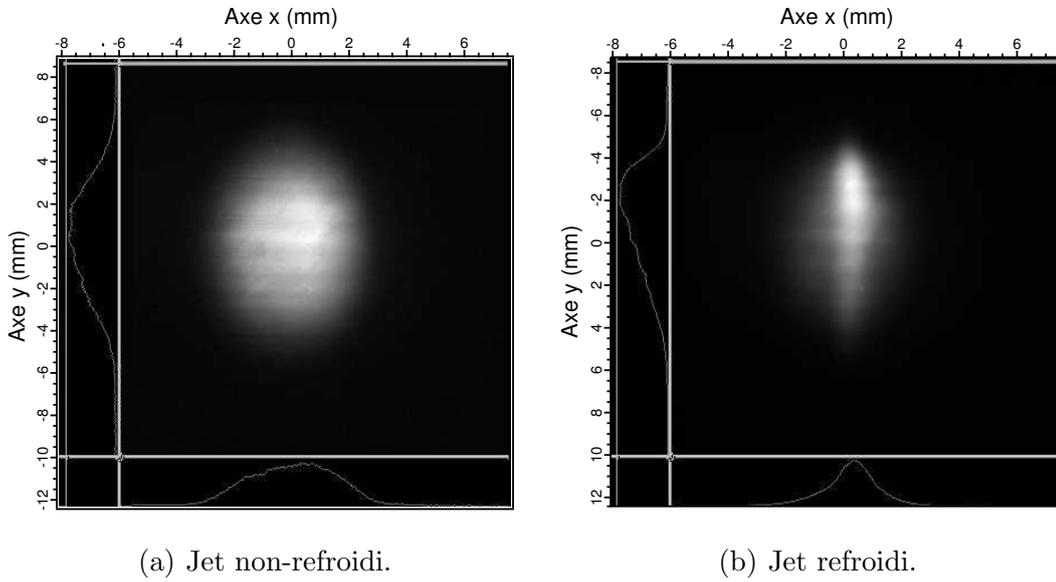


FIG. 3.11: Images par fluorescence du jet de césium refroidi et non-refroidi.

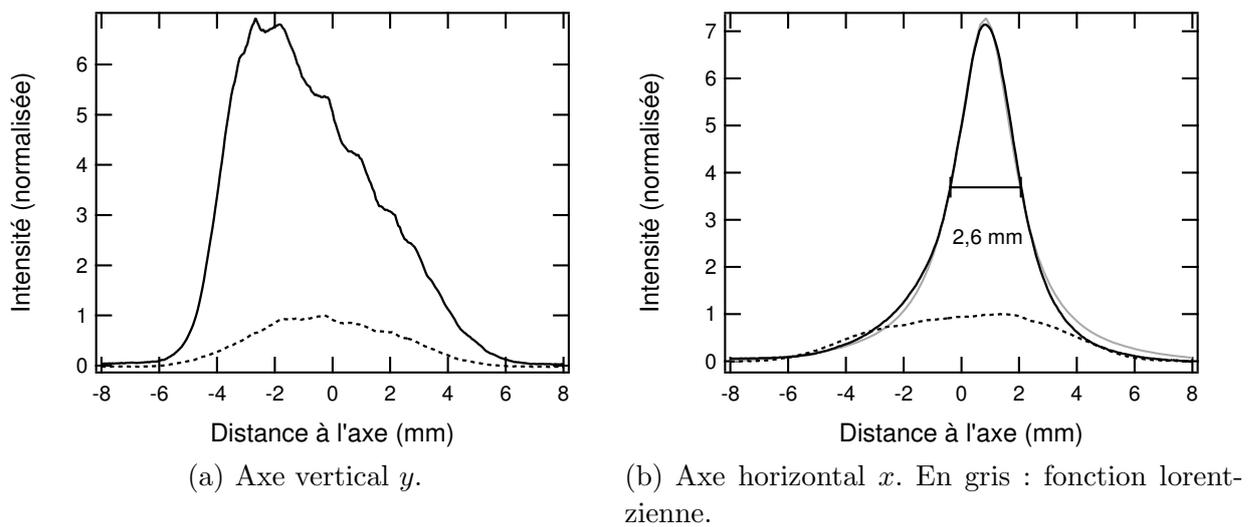


FIG. 3.12: Coupes selon les axes verticaux et horizontaux des jets non-refroidi (pointillés) et refroidi (traits pleins).

- la distance différente entre les faisceaux et la sortie du four. La position du bras vertical est fixée par le miroir de retour à environ 50 mm de la sortie du four. Avec une divergence à mi-hauteur de l'ordre de 40 mrad, comme nous l'avons calculée plus haut (§2.2.2), le jet fait déjà environ 6 mm de large en entrant dans le faisceau vertical. Par contre, le faisceau horizontal affleure à la sortie du four, la taille du jet à l'entrée de la mélasse horizontale est donc seulement de l'ordre de 2 mm (voir la figure 3.13).

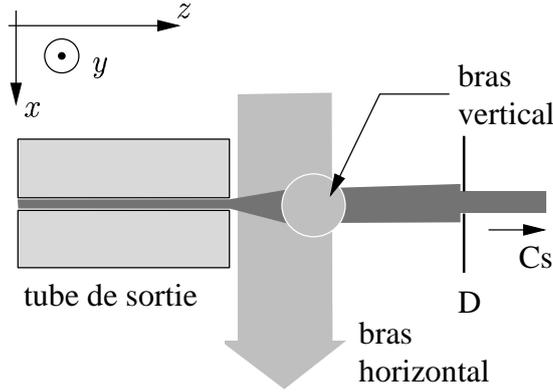


FIG. 3.13: Position des bras horizontaux et verticaux de la mélasse par rapport au tube de sortie du four.

On a calculé au chapitre 1 que le temps typique d'amortissement des vitesses transverses dans la mélasse optique était de l'ordre de 100  $\mu\text{s}$ . Pour un atome de vitesse longitudinale de 200  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  ce temps correspond à une longueur d'interaction de 16 mm, pour une intensité de la nappe de  $I_{sat}$  et un désaccord  $\delta_\omega = -\Gamma$ . Les échelles de la longueur d'interaction nécessaire au refroidissement et de la taille des faisceaux sont du même ordre de grandeur. La taille du faisceau de refroidissement vertical est certainement insuffisante pour assurer un bon refroidissement. Mais voyons plus en détails les caractéristiques obtenues.

### 3.3.2 Divergence

Après refroidissement, la divergence résiduelle est notée  $\theta_r$ . Cette divergence est reliée à la température transverse  $T_\perp$  par l'expression :

$$\theta_r = 2 \frac{\langle v_\perp \rangle}{\bar{v}} = \frac{\sqrt{\frac{2k_B T_\perp}{m}}}{\bar{v}} \quad (3.7)$$

A la limite Doppler, on a  $\langle v_\perp \rangle_D = 8.82 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ , et donc, en prenant  $\bar{v} = 200 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , on obtient :

$$\theta_r^D = 0,88 \text{ mrad} \quad (3.8)$$

La largeur à mi-hauteur de la section horizontale du jet sur la figure 3.12(b) est de 2,5 mm et la nappe de fluorescence est située à 850 mm de la sortie du four. Si on considère que la largeur du jet est donnée par sa taille en sortie du four, soit 1,6 mm, la pleine divergence à

mi-hauteur vaut alors 1 mrad, soit une valeur proche de la limite Doppler. On obtiendrait une valeur inférieure en considérant que le refroidissement ne fige la distribution de vitesse dans le jet qu'à quelques millimètres du four. Cependant, pour ne pas sous-estimer la divergence par la suite, nous conservons cette valeur comme caractéristique du jet refroidi. Cette collimation, en "ramenant" des atomes sur l'axe du jet, permet aussi d'augmenter la densité de flux au centre d'une section du jet, et le flux total à travers le diaphragme.

### 3.3.3 Gain

On compare les intensités de fluorescence du jet collimaté et du jet en l'absence de laser de refroidissement<sup>10</sup> à 95°C sur les images de la figure 3.11.

Au maximum du profil horizontal du jet, l'intensité de fluorescence est multipliée par un facteur  $G_{\text{fluo}} = 8,2$  par la mélasse optique. Pour en déduire une augmentation de la densité de flux, il faut tenir compte de la modification de la distribution de vitesse. On verra plus loin que la vitesse moyenne est de 210 m.s<sup>-1</sup> avec la mélasse et de 260 m.s<sup>-1</sup> sans refroidissement. La densité de flux au centre du jet sans refroidissement vaut 7 10<sup>11</sup> s<sup>-1</sup>. On a donc avec la mélasse :

$$\mathcal{D}_{am} = \frac{\bar{v}_{am}}{\bar{v}_{sm}} G_{\text{fluo}} \mathcal{D}_{sm} = G_{\mathcal{D}} \mathcal{D}_{sm} = 4,6 10^{12} \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2} \quad (3.9)$$

Si le signal de fluorescence est intégré sur toute l'image du jet, on obtient des totaux de 1,3 10<sup>7</sup> et 5,2 10<sup>7</sup> coups pour les jets refroidi et non-refroidi, respectivement. Le gain moyen en densité est donc d'un facteur 4, et le gain en flux total vaut  $G_{\phi} = 3,2$ . Le flux total après le diaphragme vaut  $\Phi_{am} = 1,6 10^{12} \text{ s}^{-1}$ . Les valeurs de ces différentes grandeurs sont rappelées dans le tableau 3.2.

### 3.3.4 Effets de la température de la source

Lorsqu'on augmente la température du four, la densité du jet et la vitesse des atomes augmentent. Ces deux phénomènes ont pour conséquence une limitation de l'efficacité de la mélasse.

Dans la configuration actuelle du dispositif de mélasse optique, les faisceaux de refroidissement traversent le jet avant d'être réfléchis. Tant que l'épaisseur optique du jet est négligeable, les intensités de faisceaux incidents et réfléchis sont égales, et la mélasse est équilibrée. Mais si l'absorption du faisceau incident dans le jet devient trop importante la mélasse est déséquilibrée. Les atomes ressentent une force nette dans le sens du faisceau incident, et sont défléchis. La figure 3.3.4 donne la variation de densité dans le jet en fonction de la température du four, avec et sans mélasse optique.

Sans mélasse optique, la densité dans le jet augmente selon une loi de puissance correspondant bien à la variation de la pression de vapeur saturante du césium (voir en annexe). La densité dans le jet refroidi augmente plus lentement, avant de passer par un plateau, puis de rejoindre la courbe du jet non-refroidi. Le gain de densité décroît de façon monotone avant

<sup>10</sup>Le faisceau repompeur est cependant présent, il permet de faire passer presque toute la population du jet dans le sous-niveau  $F = 4$  du fondamental, tous les atomes étant ainsi détectés. En l'absence de repompeur, la moitié de la population est initialement dans  $F = 3$

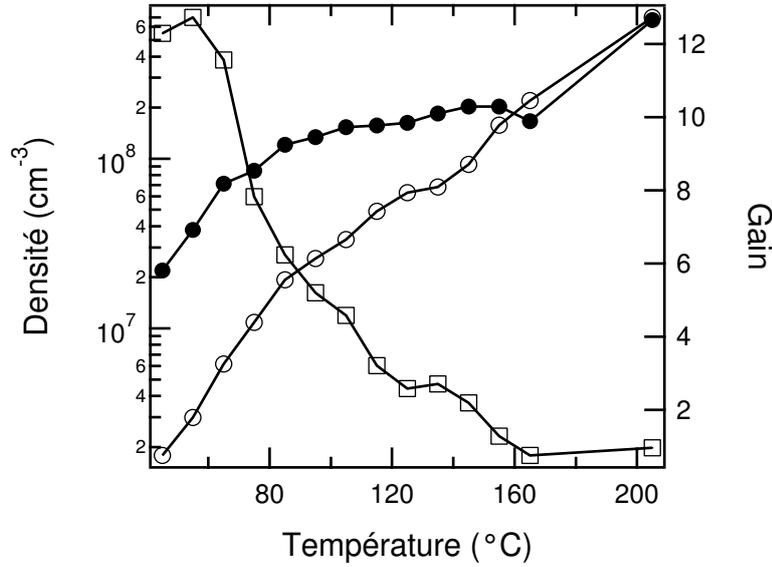


FIG. 3.14: Densités dans le jet en fonction de la température du four, avec mélasse (cercles pleins) et sans mélasse (cercles ouverts). Carrés ouvert : gain en densité grâce à la mélasse.

d'arriver à 1 vers 160°C. Or, des mesures d'absorption dans la chambre 1 ont en effet montré qu'un faisceau perdait déjà 20% de sa puissance en traversant le jet à  $T_N = 120^\circ\text{C}$ . C'est donc bien ce facteur qui limite la performance de la mélasse aux températures importantes. En pratique, ce graphique permet de déterminer le régime de fonctionnement intéressant, vers 100°C. La densité augmente peu au delà de cette température, et la qualité du refroidissement – divergence et symétrie du jet – commence à se dégrader. Nous avons estimé que la densité de flux et la divergence obtenues à 95°C étaient suffisantes pour les expériences rapportées par la suite.

L'augmentation de la température ne modifie pas seulement le densité dans le jet, mais aussi la distribution de vitesse.

### 3.3.5 Distribution de vitesse

On réalise avec le jet refroidi la mesure de la distribution de vitesse par effet Doppler déjà décrite au paragraphe 3.2.1 pour le jet non-refroidi. La figure 3.15 donne les distributions de vitesses obtenues pour différentes températures.

On peut comparer ces distributions à celles obtenues pour le jet non-refroidi. La figure 3.16 donne les distributions du jet collimaté et non-collimaté, pour  $T_F = 95^\circ\text{C}$ . La distribution de vitesse est fortement modifiée par la mélasse, les classes de vitesse inférieures à environ 200 m.s<sup>-1</sup> étant fortement privilégiées. Nous allons essayer de justifier cette observation.

On a vu (§1.3.1) que le refroidissement Doppler n'était efficace que pour des vitesses inférieures à la vitesse de capture  $v_c = |\delta_\omega|/k$ . Ainsi, dans la mélasse optique, seuls les atomes dont la vitesse transverse  $v_\perp = \sin\theta v$  est inférieure à la vitesse de capture seront refroidis. Pour une

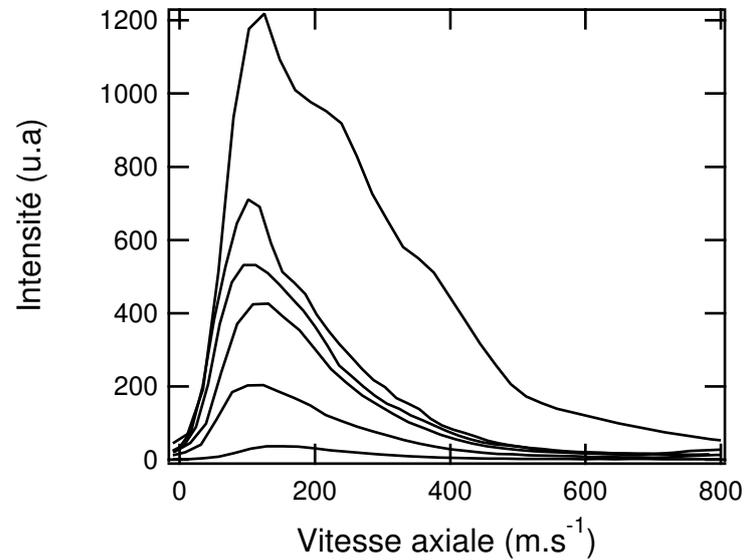


FIG. 3.15: Distribution de vitesse longitudinale du jet refroidi,  $T_F = 45, 65, 55, 75, 95,$  et  $115\text{ }^\circ\text{C}$

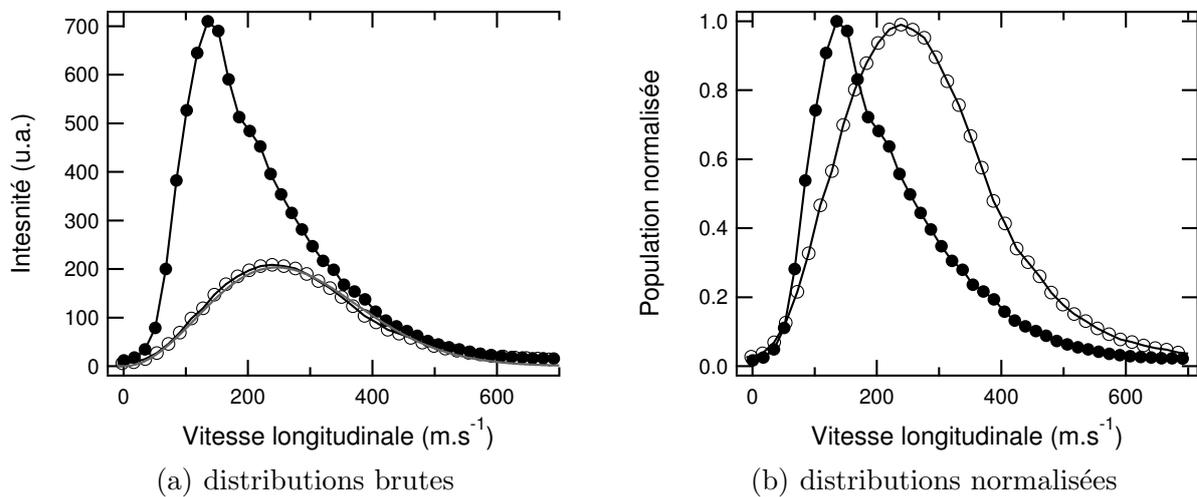


FIG. 3.16: Distributions de vitesse longitudinale dans le jet, avec et sans mélasse optique. Les distributions normalisées permettent de voir l'effet de refroidissement longitudinal de la mélasse. Cercles ouverts : sans mélasse optique, cercles pleins : avec mélasse optique.

classe de vitesse donnée, on définit un angle de capture  $\theta_c(v)$  tel que :

$$\sin \theta_c(v) = \frac{v_c}{v} = \frac{|\delta_\omega|}{kv} \quad (3.10)$$

En première approximation, seuls les atomes dont les trajectoires sont comprises dans un cône de demi-angle  $\theta_c$  seront refroidis. Cet angle est d'autant plus faible que la vitesse totale de l'atome est importante. L'efficacité de la mélasse optique diminue donc quand la vitesse des atomes augmente.

Pour évaluer l'effet de cette limitation, on considère que tous les atomes sortent du four dans un cône de demi angle  $\theta_{1/2} = 80$  mrad, et que l'intensité est constante dans ce cône. C'est-à-dire que le profil angulaire est constant entre  $-\theta_{1/2}$  et  $\theta_{1/2}$ , et nul partout ailleurs (voir la discussion sur le profil angulaire du jet, au paragraphe 2.2.2).

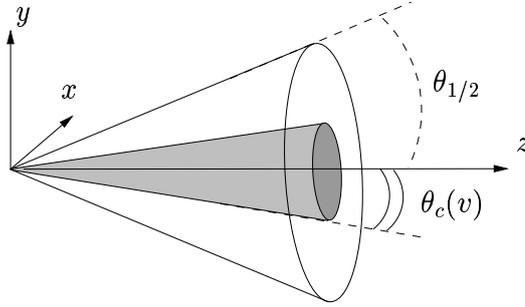


FIG. 3.17: Schéma du cône d'émission des atomes effusants du four et du cône de capture pour une vitesse donnée. Parmi les atomes compris dans le cône d'émission, seuls les atomes à l'intérieur du cône de capture sont refroidis.

Pour les atomes d'une classe de vitesse  $v$  donnée la fraction d'atomes refroidi  $A(v)$  est donnée par le rapport du flux d'atomes compris dans le cône de capture au flux total. On a donc :

$$A(v) = \frac{\int_0^{2\pi} \int_0^{\theta_c} I_{nr}(\theta) \sin \theta d\theta d\phi}{\int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} I_{nr}(\theta) \sin \theta d\theta d\phi} \quad (3.11)$$

$$= \frac{2\pi \int_0^{v_c/v} I_{nr}(\theta) \sin \theta d\theta}{I_{nr}(\theta) [1 - \cos(\theta_{1/2}/2)]} \quad \text{avec nos hypothèses} \quad (3.12)$$

$$= 1 \quad \text{si } v < \frac{v_c}{\theta_{1/2}/2} \quad (3.13)$$

$$= \frac{1 - \cos(v_c/v)}{1 - \cos(\theta_{1/2}/2)} \simeq \frac{4}{\theta_{1/2}^2} \frac{v_c^2}{v^2} \quad \text{si } v > 2 \frac{v_c}{\theta_{1/2}} \quad (3.14)$$

Pour les vitesses supérieures à  $2v_c/\theta_{1/2}$ , soit  $220 \text{ m.s}^{-1}$  la fraction d'atomes refroidis décroît donc rapidement – comme  $1/v^2$ . Ce critère est indépendant de la distribution de vitesse, donc de la température dans le jet.

L'effet de sélection en vitesse décrit ci-dessus justifie qualitativement la forme des distributions de vitesse observées : on observe sur la figure 3.15 un maximum de la distribution de

vitesse autour de  $150 \text{ m.s}^{-1}$ , indépendamment de la température du four. Nous allons voir que ce phénomène a pour conséquence un refroidissement effectif de la température longitudinale dans le jet.

À partir des données de la figure 3.15, on peut mesurer la vitesse moyenne  $\bar{v}$  du jet refroidi. La figure 3.18 permet de comparer ces vitesses avec et sans mélasse.

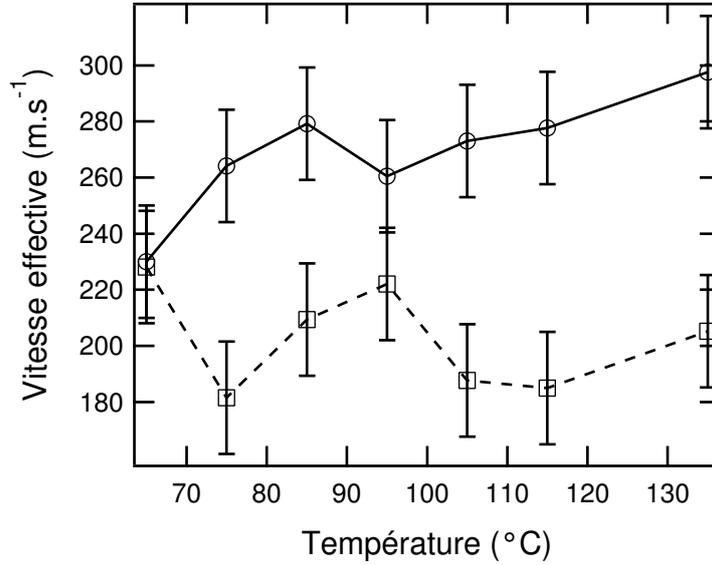


FIG. 3.18: Vitesses moyennes en fonction de la température du jet, avec et sans mélasse. Cercles ouverts : sans mélasse optique, carrés pleins : avec mélasse optique.

Avec la mélasse, la vitesse moyenne est quasiment constante sur la gamme de températures étudiées et systématiquement plus faible que la vitesse du jet non-refroidi à la même température. On peut vérifier que la distribution de vitesse du jet refroidi n'est presque pas modifiée lorsqu'on augmente la température du four, comme illustré sur la figure 3.19.

On a donc un effet de "refroidissement" longitudinal : la largeur de la distribution de vitesse est inférieure à la largeur de la distribution de Maxwell-Boltzmann pour la même température du four sans la mélasse optique. La température associée à une vitesse de  $200 \text{ m.s}^{-1}$  correspond à une température de  $45 \text{ °C}$ .

Après avoir étudié l'effet d'une modification de la température du four sur la distribution de densité et la distribution de vitesse longitudinale avec la mélasse optique, nous allons étudier les effets d'une modification des paramètres du laser, c'est-à-dire son désaccord et sa puissance, sur la qualité du refroidissement.

### 3.3.6 Désaccord et puissance optimaux

On s'intéresse premièrement à l'effet d'une modification du désaccord du laser de refroidissement. Ce paramètre est fixé par la fréquence du modulateur acousto-optique contrôlée par un générateur haute fréquence. Lors de l'optimisation de la mélasse, ce paramètre est réglé en observant directement le jet refroidi, et optimisé plusieurs fois pendant un réglage. Contrairement à la température, il n'a donc pas été fixé une fois pour toutes dans les expériences.

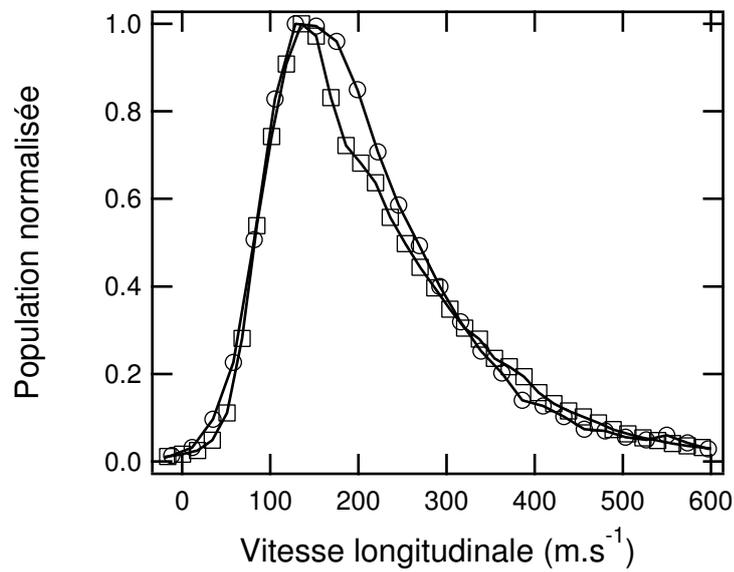


FIG. 3.19: Distributions de vitesse normalisées pour des températures du four de 45 °C (cercles) et 95 °C (carres).

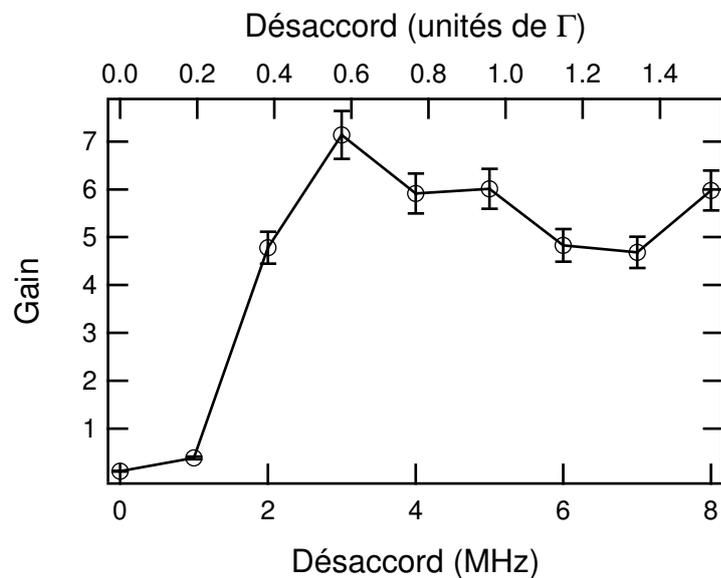


FIG. 3.20: Gain en densité de flux en fonction du désaccord en fréquence

La variation du gain en densité de flux  $G_D$  par la mélasse optique en fonction du désaccord est donné sur la figure 3.3.6. On observe un plateau du gain à partir d'un décalage de l'ordre de 3 MHz, soit environ  $\Gamma/2$ . L'augmentation du désaccord a plusieurs effets sur la mélasse : il diminue d'une part l'amplitude de la force et augmente la vitesse de capture. À puissance fixée d'autre part, l'augmentation du désaccord diminue le paramètre de saturation et donc le taux d'absorption dans le jet. La diminution de la pression de radiation tend à limiter la qualité de la mélasse optique, tandis que l'augmentation de la vitesse de capture et la diminution du taux d'absorption sont favorables. Ces effets se compensent dans la gamme de désaccords explorée ici.

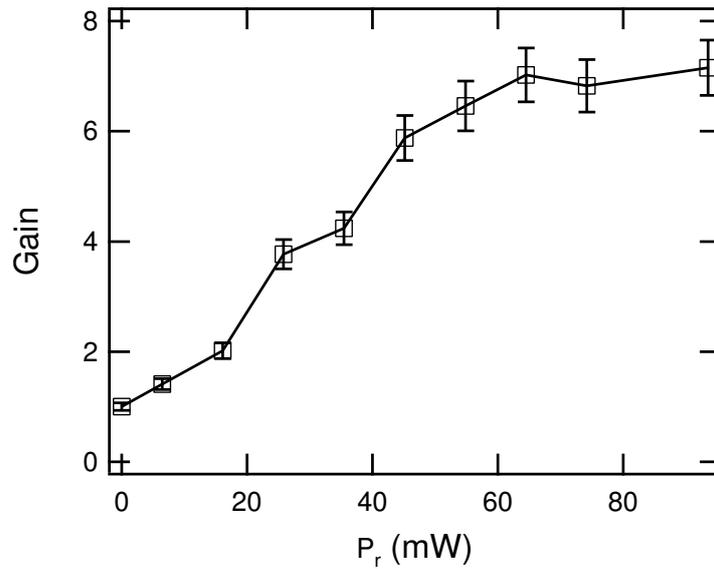


FIG. 3.21: Gain en densité de flux en fonction de la puissance du faisceau de refroidissement

Deuxièmement, on étudie la variation du gain en fonction de la puissance du laser de refroidissement. Cette mesure est rapportée sur la figure 3.3.6. L'augmentation de la puissance du faisceau de refroidissement augmente la pression de radiation, mais augmente aussi le taux d'absorption des atomes. Cette augmentation du taux d'absorption augmente l'émission spontanée et la dispersion de vitesse dans le jet. L'augmentation de la pression de radiation semble cependant dominer ici. Le gain suit une courbe de saturation typique, et varie peu au delà de 60 mW. En pratique, on utilise toute la puissance disponible.

### Stabilité du jet

Il est enfin intéressant de connaître la stabilité de la mélasse optique au cours du temps. Pour évaluer cette stabilité, on a pris une série de photos toutes les 2,4 secondes pendant 10 minutes, avec et sans mélasse optique. On a obtenu les deux séries de données de la figure 3.22.

On constate en premier lieu que le jet sans mélasse optique est très stable. Le signal mesuré dépend seulement du flux de césium, donc de la température du four et de l'intensité du laser. Ces deux paramètres sont très stables, l'écart type de cette série de données vaut 0,6%. Le signal

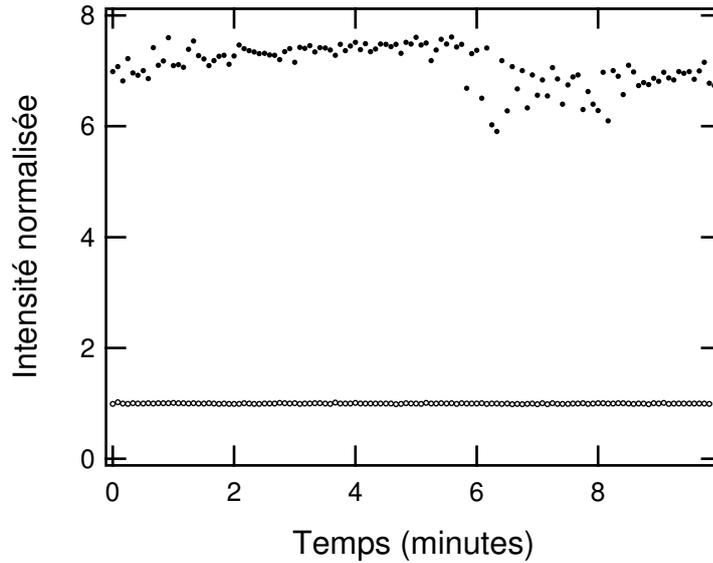


FIG. 3.22: Intensité de fluorescence en fonction du temps avec et sans mélasse optique, normalisé par rapport à la moyenne du signal pour le jet non-refroidi.

associé au jet refroidi est moins stable. La valeur moyenne de l'intensité de fluorescence est de 7,1 et l'écart type vaut 5% du signal moyen. On peut distinguer deux régimes dans cette série de mesures. Pendant les 6 premières minutes, le signal est stable et augmente lentement, puis devient beaucoup plus bruité. Ces variations reflètent une instabilité du laser de refroidissement. Ce genre d'instabilité apparaît au début d'une journée d'expérience, comme au moment où ont été réalisées ces mesures. Après quelques heures de fonctionnement, les lasers sont plus stables. À l'échelle de plusieurs semaines, du fait des différentes dérives dans le fonctionnement de la mélasse, on obtient un gain en densité de flux comprise entre 6 et 10.

### 3.3.7 Résumé des caractéristiques du jet refroidi pour $T_F = 95^\circ\text{C}$

Le tableau 3.2 résume les caractéristiques du jet refroidi.

$\theta_r$	$< 1 \text{ mrad}$
$\bar{v}$	$= 210 \text{ m.s}^{-1}$
$\Phi$	$= 4,6 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$
$I_{at}(0)$	$= 5,1 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$
$\mathcal{D}_0$	$= 1,6 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$

TAB. 3.2: Caractéristiques du jet refroidi au niveau de la nappe de fluorescence (en  $z = 850 \text{ mm}$ ), pour une température du four  $T_F = 95^\circ$ , avec la mélasse optique

### 3.3.8 Améliorations possibles

#### Front d'onde

On a vu que la qualité du refroidissement vertical était limitée par la géométrie du dispositif (§3.3.1). Une première amélioration à mener consisterait à changer le miroir de rétro-réflexion du bras vertical pour le remplacer par un miroir de 12.5 mm  $\times$  50 mm à 45° pour renvoyer le faisceau à l'extérieur de la chambre, où il pourrait être focalisé et réfléchi à travers une lame  $\lambda/4$ . Cette modification permettra un alignement plus fin de ce faisceau, et une longueur d'interaction suffisante.

Une des limitations de l'efficacité de la mélasse aux températures supérieures à 100 °C vient de l'épaisseur optique trop importante du jet. Le faisceau rétro-réfléchi a déjà traversé le jet une fois, et la différence d'intensité des deux faisceaux déséquilibre la mélasse. On peut régler ce problème en séparant chaque bras de la mélasse par une lame séparatrice, et en faisant contourner la chambre par les faisceaux de retour. On pourrait alors employer des températures plus importantes, il n'est pas gênant que les faisceaux soient atténués au milieu du jet, car les atomes à cet endroit se propagent déjà selon l'axe optique.

#### Autres schémas de refroidissement

Certaines méthodes de refroidissement permettent d'améliorer la température transverse : front d'ondes courbés, réflexions multiples d'un faisceau de petite taille, mélasses en lumière blanche ou piège magnéto-optique à deux dimensions [4]. L'application de ces méthodes à notre dispositif n'a pas encore été étudiée.

#### Lentille magnétique et deuxième mélasse

Cependant, pour augmenter significativement le flux atomique, la méthode la plus efficace consisterait à focaliser le jet par un hexapôle magnétique [1]. R. Mathevet a réalisé des simulations démontrant la possibilité d'un doublet de lentilles magnétiques "quasi-achromatique", c'est-à-dire ayant presque le même point focal pour toutes les classes de vitesses longitudinales. On peut envisager de placer ce doublet après la mélasse optique. Les atomes focalisés seraient cependant de nouveau divergeants – par conservation de la densité dans l'espace des phases – et il faudrait une nouvelle mélasse optique pour obtenir un faisceau collimaté plus fin et plus dense. En diminuant la section du jet d'un facteur 3, on gagnerait ainsi un facteur 10 sur le flux atomique.

On voit qu'il serait possible d'augmenter significativement le flux atomique, ce qui pourra s'avérer crucial pour des expériences de lithographie, telles que celles que nous allons présenter dans le chapitre suivant.



# Chapitre 4

## Nano-lithographie atomique de l'or

### 4.1 Introduction

Les expériences de lithographie atomique se partagent entre les méthodes de dépôt direct, pour des espèces stables à l'air – ou utilisées directement sous vide – et des méthodes indirectes, analogues à la gravure à l'eau-forte : une résine protectrice déposée sur le substrat à graver est enlevée par un stylet selon le motif souhaité. La plaque est ensuite plongée dans une solution acide qui creuse le substrat là où la résine a été enlevée, le reste du substrat étant protégé. Pour réaliser des motifs de taille nanométrique avec de telles méthodes, l'épaisseur de la résine doit être au moins comparable à la taille typique des motifs employés, un rapport d'aspect trop important dégraderait le procédé de gravure. Les couches mono-moléculaires auto-assemblées [15] sont en cela idéales : leur épaisseur ne dépasse pas quelques nanomètres. Ces films sont étudiés – parmi de nombreuses autres applications – depuis une douzaine d'années en tant qu'intermédiaires de lithographie atomique, avec des gaz rares métastables [16] ou d'alcalins [17, 18]. Dans le cas des gaz métastables, l'énergie interne de l'état excité est relâchée lors de l'impact sur la surface et endommage la résine (probablement en ionisant la chaîne carbonée [19]). Dans le cas du césium, on suppose que c'est la réactivité de l'atome qui agit, bien que le mécanisme précis de cette réaction ne soit pas complètement décrit à notre connaissance. Pour modifier la distribution de densité dans le jet, on peut utiliser des masques lumineux [20], comme on l'a dans les expériences rapportées dans l'annexe A, ou employer un masque matériel. C'est cette dernière possibilité qui nous a intéressée. Dans ce chapitre, nous donnons en premier lieu une description rapide de la résine et du substrat employés. Nous rapportons ensuite les diverses expériences qui nous ont permis de caractériser les cinétiques de l'exposition de la résine au césium et de la gravure chimique. Une fois ces procédés maîtrisés, nous avons employé deux sortes de masques nano-structurés. Nous décrirons ces masques et les motifs obtenus. Une grande partie de ce travail a été menée par C. O'Dwyer et a par ailleurs fait l'objet de trois publications [21, 22, 23], dont nous résumons ici le contenu.

### 4.2 Les monocouches moléculaires auto-assemblées

Les monocouches moléculaires auto-assemblées (SAM, de l'anglais *Self Assembled Monolayer*) sont constituées d'un arrangement moléculaire régulier sur une surface métallique (de

l'or dans notre cas) avec une épaisseur mono-moléculaire. Ces molécules sont constituées d'une chaîne carbonée terminée par un groupement thiol (-SH). Ce groupement peut s'attacher à une surface métallique par chimisorption, laissant la chaîne carbonée pointer vers la surface. Lorsque la surface est saturée de molécules, celles-ci tendent à s'organiser en structures cristallines.

Ces composés sont largement étudiés depuis une vingtaine d'année et ont trouvé des applications dans de nombreux domaines : biologie cellulaire, réalisation d'agrégats métalliques... Ce grand succès technologique repose sur plusieurs avantages : leur facilité de préparation en solution, leur très bonne stabilité à l'air et un coût de production très faible. La possibilité de modifier la chaîne carbonée et le groupe fonctionnel terminal (opposé au groupe thiol) permet en outre une grande variété de propriétés physico-chimiques (voir à ce sujet la revue très complète de G. M. Whitesides *et al.* [24]).

Ces résines peuvent s'adapter aux méthodes classiques de lithographie (UV, électronique, ionique, à rayons X) et des méthodes plus spécifiques, comme l'impression par micro-contact [25], ou à la lithographie atomique.

Avant de décrire la molécule et son organisation sur la surface, attardons nous sur le substrat sur lequel le film mono-moléculaire est déposé.

### 4.2.1 Le substrat

Il s'agit d'une couche d'or de 30 nm d'épaisseur déposée sur une galette de silicium monocristalin Si(100), sur laquelle est préalablement déposée une couche d'adhésion de chrome de 4 nm. La qualité de la surface d'or joue un rôle prépondérant dans la qualité du film moléculaire et partant de tout le procédé de lithographie. Le taux de recouvrement de la surface cristalline par le film dépend en effet de son homogénéité.

La méthode la plus satisfaisante pour l'obtention d'une surface d'or de très bonne qualité consiste à déposer par épitaxie l'or sur un cristal de mica clivé auquel on fait ensuite subir un recuit. On obtient ainsi un monocristal d'or orienté selon l'axe (111) de la maille cubique face centrée du réseau cristallin. Cette méthode est cependant difficile à mettre en œuvre. Deux procédés de dépôt plus courants ont été étudiés au cours de ces expériences : l'évaporation et la projection (*sputtering*).

Un travail d'analyse des surfaces obtenues a été mené en s'appuyant sur plusieurs outils :

- La diffraction de rayons X en incidence rasante (*Grazing Incidence X Ray Diffraction, GIXRD*) permet de déterminer les orientations cristallines des différents grains présents sur la surface, les intensités des pics de diffraction mesurant l'abondance relative de chaque orientations.
- Les méthodes de microscopie à force atomique (AFM) et électronique à effet tunnel (STM) permettent de mesurer la granularité de la surface, la distribution de taille des grains et leur structure et la densité de défauts, en particulier de défauts ponctuels (les *pinholes*<sup>11</sup>).

### Couche d'or évaporée

Dans cette méthode un gaz atomique d'or est obtenu par chauffage par effet Joule dans la chambre de dépôt. La surface obtenue est très polycristalline, comme le montre le spectre

<sup>11</sup>Nous emploierons ce terme par la suite.

GIXRD (figure 4.1), où sont présents plusieurs pics d'intensité comparable, correspondant aux orientations (111), (200), (220), (331) et (222) des différents réseaux cristallins. La fraction de grains orientés (111) vaut 49 %.

Les images par microscopie à effet tunnel (STM) font apparaître une taille moyenne des grains de 45 nm, avec une distribution large des tailles. La rugosité vaut  $6,7 \pm 1,2$  nm (figure 4.2).

## Sputtering

Les atomes d'or sont ici projetés sur la surface à l'aide d'un gaz porteur. Le spectre montre ici une grande prédominance de l'orientation (111), avec un pic secondaire pour l'orientation (222), les autres orientations n'étant pas détectées. La fraction d'orientation (111) vaut 94 %. La taille moyen des grains observés par microscopie est de 150 nm. La comparaison des largeurs du pic de diffraction associé à l'orientation dominante pour les deux méthodes (figure 4.1(b)) permet de déduire que la couche produite par sputtering a un degré de cristallinité plus grand.

Des images à plus haute résolution montrent enfin que les grains sont structurés en terrasses par des empilements pyramidaux de plans cristallins de hauteur mono-atomique (soit environ 0,5 nm). La densité de *pinholes* est importante dans les deux cas. La qualité de la surface est cependant nettement supérieure avec la méthode de sputtering. La figure 4.2 montre des images STM larges (300 nm par 300 nm) de ces deux surfaces, où apparaît clairement la différence de granularité.

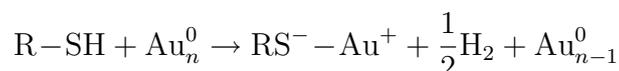
Ainsi, cette dernière méthode de dépôt de la résine permet d'obtenir une surface beaucoup plus homogène que par évaporation. Nous verrons que cette qualité de surface est suffisante pour nos premières expériences de lithographie, alors que les couches d'or évaporées ne permettent pas d'obtenir un résultat fiable. La qualité de la surface gouverne en effet le degré d'homogénéité de l'organisation du SAM, que nous allons maintenant détailler.

### 4.2.2 Dépôt de la résine

Après préparation de la surface d'or, celle-ci est nettoyée dans une solution à trois parts pour une de  $\text{H}_2\text{SO}_4:\text{H}_2\text{O}_2$  pendant 5 minutes. Cette étape permet d'enlever toutes les pollutions organiques de la surface. Après rinçage à l'eau déminéralisée, le substrat est plongé dans une solution millimolaire ( $10^{-3}\text{mol.L}^{-1}$ ) de nonanethiol dans de l'éthanol à 95 %. Le substrat est maintenu dans la solution 24 heures à température ambiante.

## Adsorption

Durant l'immersion du substrat, les molécules de nonanethiol sont adsorbées sur la surface. Le groupe fonctionnel -SH crée une liaison avec un atome d'or à la surface. On suppose que la réaction d'adsorption est la suivante :



La liaison formée a donc un caractère covalent, et l'énergie de liaison est autour de 2 eV. Les études de microscopie montrent que les groupes thiols se localisent dans les creux entre

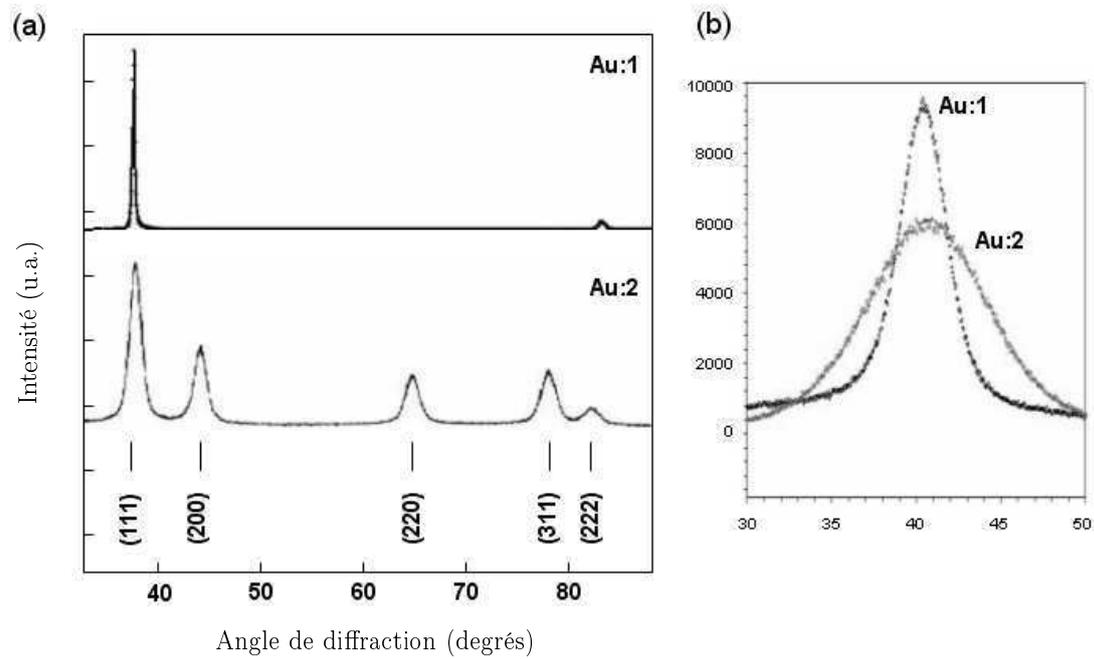


FIG. 4.1: Spectres GIXRD des films d'or obtenu par évaporation et sputtering. Les spectres sont obtenus en incidence rasante pour minimiser les contributions du substrat. Au :1 couche obtenue par sputtering, Au :2 couche obtenue par évaporation. À droite : vue détaillée du pic de diffraction correspondant à l'orientation (111).

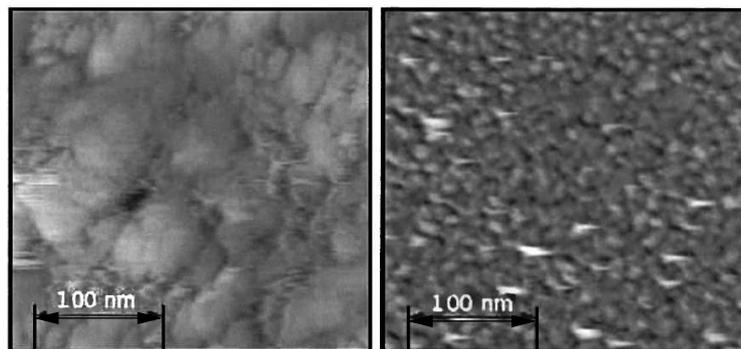


FIG. 4.2: Images par microscopie STM des surfaces d'or obtenues par sputtering (à gauche) et par évaporation (à droite).

trois atomes d'or du réseau cristallin. Une fois la liaison établie, la chaîne carbonée pointe à l'opposé de la surface. Au taux de couverture de saturation, les molécules de thiols forment un film, chaque chaîne carbonée repoussant ses voisines sous l'effet de la force de Van der Waals. Cette répulsion mutuelle induit un ordre à longue portée dans la structure du film moléculaire.

### Organisation sur la surface

La structure cristalline du film moléculaire déposé sur un plan d'orientation (111) est représentée sur la figure 4.3. Cette structure est dénommée  $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ . Comme son nom l'indique, elle repose sur une maille hexagonale de pas  $\sqrt{3}a$ , où  $a$  est l'unité de maille du réseau d'or sous-jacent. Les chaînes carbonées sont inclinées de  $30^\circ$  par rapport à la normale du plan du substrat.

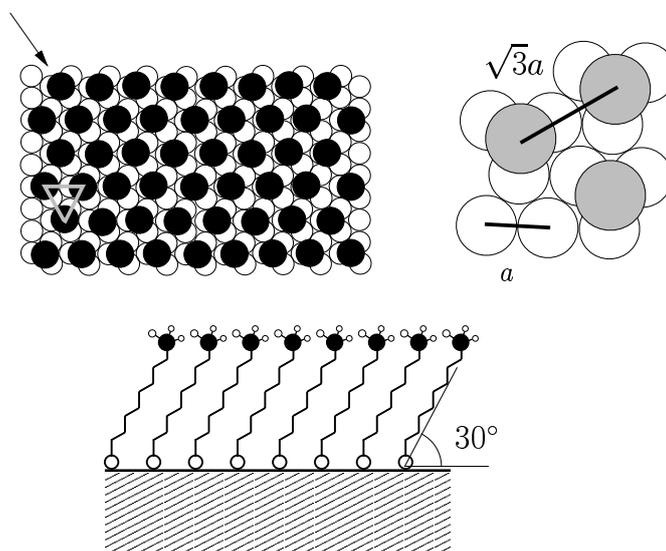


FIG. 4.3: Représentation de l'organisation des molécules de nonanethiols sur la surface d'or sous-jacente. Sur la vue large du réseau cristallin, le triangle gris indique une maille élémentaire et la flèche indique la direction de la ligne de molécules représentées en dessous.

Cette structuration est en fait fortement avantageée par le très bon accord entre la distance d'équilibre entre les molécules du SAM et le pas du réseau hexagonal sous-jacent. Dans le cas des autres plans cristallins du substrat d'or, un tel accord entre la maille du réseau et la position préférentielle des molécules n'apparaît pas. C'est pourquoi l'obtention par sputtering d'une proportion importante de grains orientés (111) est importante.

Deux autres configurations, dues à des rotations d'une partie de la chaîne carbonée autour de son axe, ont été observées. Elles forment des super-réseaux de paramètres de maille  $(4 \times 2)$  et  $(3 \times 2\sqrt{3})$ . Le film est cependant très loin d'être homogène, et on a ici encore une structure granulaire, comportant des domaines mono-cristallins de quelques dizaines de nanomètres séparés par des frontières de dimension moléculaire. Cette granularité est d'abord due aux non-uniformités du métal sous-jacent : différences d'orientations cristallines, inclinaison des plans cristallins de même orientation entre deux grains, *pinholes*. L'imagerie AFM en mode sans contact permet

de mesurer le taux de recouvrement du film moléculaire sur la surface (voir la figure 4.2.2). On obtient des taux de 59 % et 21 % pour les surfaces sputtered et évaporées, respectivement.

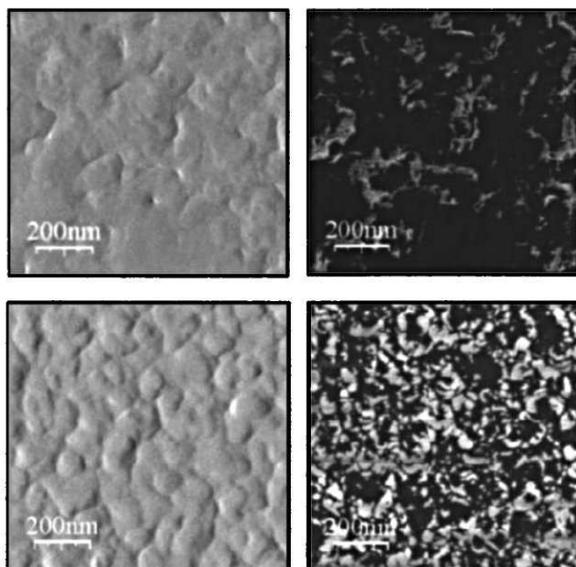


FIG. 4.4: À gauche : topographie de la surface d'or après dépôt du SAM, à droite : carte de la phase des oscillations de la pointe AFM. Les deux images du haut représentent la même région d'une surface sputtered, les deux images du bas provenant d'un échantillon obtenu par évaporation.

Une image plus précise fait apparaître la variété de configurations rencontrées (voir la figure 4.5). La taille moyenne des grains est de 20 nm, plus petite que la taille des grains d'or, plusieurs domaines peuvent donc se former sur un grain d'or mono-cristallin, du fait de la croissance du film selon deux orientations différentes à partir de deux noyaux de nucléation distincts. On observe en outre que des défauts ponctuels sont présents, avec une distribution commensurable à celle observée pour les *pinholes* avant le dépôt du film.

Cette granularité implique une limitation de la résolution que l'on peut obtenir par cette méthode de lithographie, autour de vingt nanomètres. Étant donnée la relative simplicité des procédés employés, ce résultat est très satisfaisant : il nous permettra de mener des expériences de lithographie atomique avec des motifs de l'ordre de cent nanomètres.

## 4.3 Lithographie d'une surface d'or

Le principe de la lithographie est décrit schématiquement sur la figure 4.6.

### 4.3.1 Exposition au césium

On a vu (§4.2.2) que l'énergie de liaison d'une molécule de nonanethiol sur la surface était de l'ordre de 2 eV. L'énergie cinétique d'un atome de césium à 200 m.s<sup>-1</sup> vaut quant à elle 55 meV. L'influence du césium sur le SAM ne peut donc pas être purement mécanique. Une

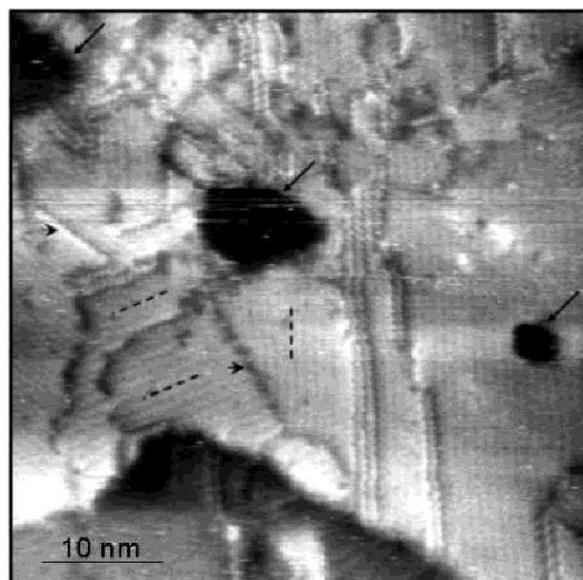


FIG. 4.5: Image STM de la surface d'or sputtered recouverte par un film moléculaire. Les points noirs indiqués par les flèches correspondent à des dépressions de profondeur mono-atomiques dans la surface d'or sous-jacente. Les lignes en pointillé indiquent le domaines de symétrie équivalente, pour deux orientations.

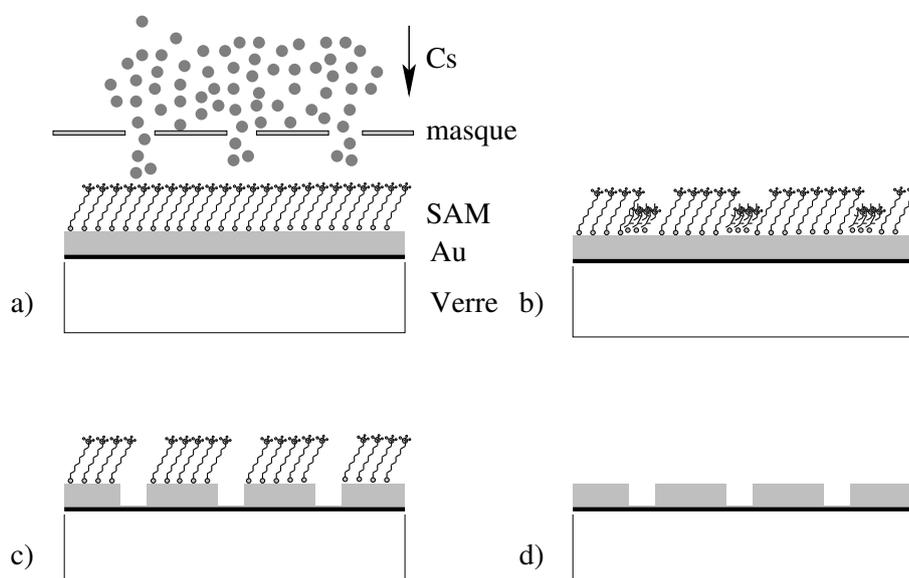


FIG. 4.6: Principe de la lithographie atomique. (a) Un film mono-moléculaire déposé sur une surface d'or est exposé au jet de césium à travers un masque. (b) Les atomes de césium endommagent localement la résine. (c) Une étape de gravure chimique enlève la couche d'or sous les régions exposées. (d) Après rinçage, on obtient une surface d'or structurée.

réaction chimique doit avoir lieu pour expliquer la grande efficacité de la gravure. L'hypothèse communément admise, même si le mécanisme en jeu est peu clair, consiste à considérer que le césium détruit la liaison Au-S. Au cours de l'exposition, on souhaite déposer une dose de césium suffisante pour endommager le film sur les régions exposées, en minimisant le temps d'exposition et sans que la dose soit trop importante et puisse endommager les régions non-exposées.

### Dispositif expérimental

Après le dépôt du SAM, les échantillons sont exposés au flux de césium. Les supports d'échantillons sont conçus pour s'adapter sur une translation trois axes montée sur la bride supérieure de la chambre 3 (voir le schéma 2.1). Le vide est cassé dans cette chambre pour introduire l'échantillon. Cependant, grâce aux performances du système de pompage, on retrouve un vide de l'ordre de  $10^{-8}$  mBar après quelques dizaines de minutes. Chaque support est doté d'un trou de centrage qui laisse passer le jet de césium imagé par fluorescence dans la chambre suivante. On prend des images du jet avant et après l'exposition, avec et sans mélasse. La comparaison des images avec et sans mélasse permet de déterminer le gain de la mélasse et donc le flux dans le jet. Le flux sans mélasse ne dépend en effet que de la température du four, maintenue constante, à 95 °C. Dans ces conditions, la densité de flux dans le jet de césium sans mélasse est estimé (voir le tableau 3.1) à  $6,5 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ .

### Après l'exposition, avant la gravure

Nous avons dans un premier temps employé un masque matériel macroscopique constitué d'une grille métallique (période 80  $\mu\text{m}$ , diamètre 30  $\mu\text{m}$ ), facile à imager. Des substrats sont exposés pour différents temps, de 5 à 30 minutes, puis directement imagés par le microscope à force atomique. Pour les échantillons exposés de 5 à 10 minutes, aucun motif n'est visible. Mais, à partir d'un temps d'exposition de 15 minutes, si la topographie du substrat n'a pas changé on peut voir un changement sur les régions exposées par microscopie de force latérale : le microscope à force atomique est utilisé en mode contact et balaye la surface (voir la figure 4.7). On peut alors mesurer le coefficient de friction ressenti par la pointe dans la direction parallèle à la surface. Ce coefficient diffère selon que le SAM est ou non endommagé par le césium, indiquant une différence d'adhésion de la couche moléculaire à la surface d'or sous-jacente.

### Détermination de la dose de césium minimale

Pour étudier la dose optimale de césium nécessaire à la gravure, nous avons réalisé des expositions de 15 et 30 minutes d'un échantillon en utilisant la grille comme masque matériel. L'échantillon coupe entièrement le jet. Après exposition, l'échantillon est développé par gravure chimique (nous donnerons par la suite des précisions sur cette étape). La surface d'or gravée est ensuite imagée optiquement et par l'AFM. La figure 4.3.1 montre une image obtenue au microscope optique de la région de transition.

Pour une exposition de 15 minutes, la largeur de la zone exposée vaut 1,3 mm selon l'axe horizontal  $x$ . En déterminant la distribution d'intensité  $I(x)$  dans le jet par fluorescence, et dans la mesure où le flux total est connu, on peut déterminer la densité de flux vu en un point du substrat, et donc la dose reçue localement.

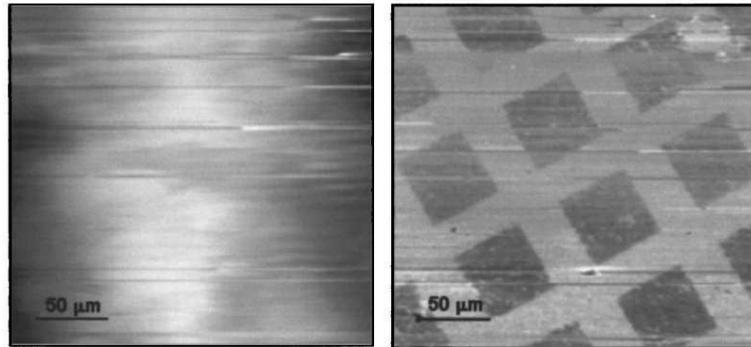


FIG. 4.7: Image AFM en mode contact d'un échantillon exposé pendant 15 minutes, avant la gravure chimique. À gauche : topographie, à droite : microscopie par force latérale.

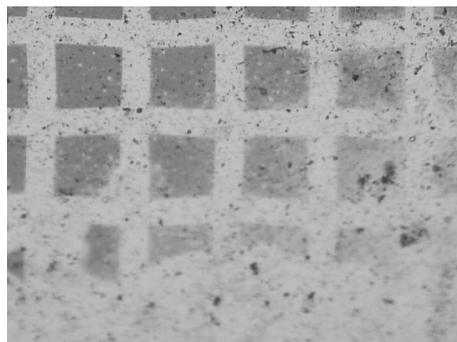


FIG. 4.8: Image au microscope optique de la transition entre une exposition suffisante et la sous-exposition.

Le gain de densité de flux de la mélasse valait ici 7, la densité de flux moyenne  $\mathcal{D}_m$  peut donc être estimée à  $4 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$  (voir le §3.2.2). La dose de césium  $D_{Cs}$  reçue à 1,3 mm du centre du jet vaut donc :

$$D_{Cs} = \int_0^{15 \text{ min}} \frac{I(1,26 \text{ mm})}{\int I(x) dx} \mathcal{D}_m dt \quad (4.1)$$

Soit environ  $3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ . Les images AFM et STM de résolution moléculaire permettent de déterminer la densité des molécules de nonanethiol sur la surface. On a vu que dans le cas d'un réseau  $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ , on a 4 molécules de nonanethiol par  $\text{nm}^2$ , soit  $4 \cdot 10^{14}$  molécules par  $\text{cm}^2$ , en l'absence de défauts. Rapporté à la dose de césium reçue calculée plus haut, il faut donc environ 8 atomes de césium par molécule de SAM pour exposer le substrat à la gravure chimique, que nous allons maintenant étudier.

### 4.3.2 Gravure chimique

Dernière étape du procédé de lithographie, l'attaque chimique est réalisée après exposition au césium.

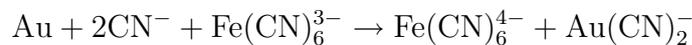
#### Préparation de la solution

On prépare une solution dont la composition est donnée dans le tableau 4.1.

Composé	Concentration
KOH	1 mol.L <sup>-1</sup>
K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,1 mol.L <sup>-1</sup>
K <sub>3</sub> Fe(CN) <sub>6</sub>	0,01 mol.L <sup>-1</sup>
K <sub>4</sub> Fe(CN) <sub>6</sub>	0,001 mol.L <sup>-1</sup>

TAB. 4.1: Composition de la solution pour la gravure chimique

La gravure se fait par dissolution de l'or dans cette solution, l'étape importante de ce procédé étant la formation du complexe ionique  $\text{Au}(\text{CN})_2^-$  selon :



Les régions recouvertes du film moléculaire non exposé sont protégées de cette dissolution par la queue carbonée hydrophobe de l'alcanthiol. Cette protection ne fait cependant que ralentir la vitesse de gravure, il est donc important de déterminer, à concentration d'ions ferricyanide donnée, la vitesse de gravure et le temps optimum d'immersion dans la solution.

#### Optimisation du temps de gravure chimique

Deux expériences ont été réalisées en employant toujours la grille décrite ci-dessus comme masque. La première a simplement consisté à faire un relevé topographique d'un motif gravé en variant le temps de gravure pour chaque échantillon. La figure 4.9 donne la profondeur du motif en fonction du temps de gravure. Le taux de gravure maximum est de  $2,2 \text{ nm} \cdot \text{min}^{-1}$ . On observe que la réaction débute par une phase plus lente de nucléation pour laquelle la surface

de réaction est effectivement plus faible. Après 25 minutes, le taux de gravure diminue. L'écart de hauteur entre les parties gravées et non gravées atteint presque l'épaisseur nominale de la couche d'or (40 nm).

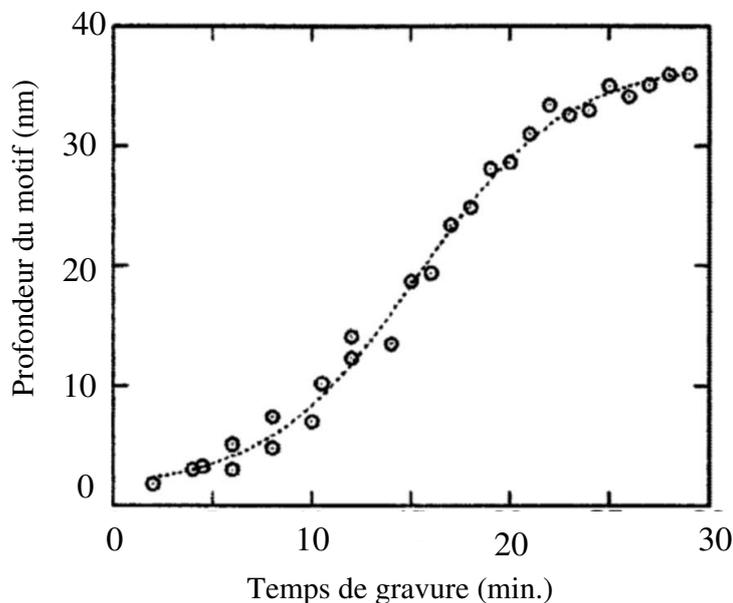


FIG. 4.9: Profondeur des motifs d'or en fonction du temps de gravure. Tous les échantillons ont été exposés et développés dans les mêmes conditions.

Une expérience complémentaire peut être réalisée *in situ* : Un laser hélium-néon illumine le substrat plongé dans la solution de gravure. La réflexion sur le motif périodique en train de se former produit une figure de diffraction dont l'intensité est proportionnelle à la différence du taux de réflexion des régions gravées et non gravées. Il n'y a pas de différence optique sensible entre l'or recouvert d'un film exposé ou non-exposé, et pas de figure de diffraction avant le gravure. La figure 4.3.2 décrit notre dispositif expérimental. A partir des images de la caméra CCD, on peut relever l'évolution d'intensité du pic d'ordre 5.

On obtient le graphique donné dans la figure 4.11. On retrouve une cinétique comparable à celle observée en mesurant la profondeur du motif gravée (figure 4.9). Après un plateau entre 20 et 25 minutes, l'intensité du pic de diffraction décroît : les parties non exposées de la surface d'or sont à leur tour dissoutes dans la solution. Après 60 minutes, toute la surface d'or est enlevée.

En résumé, nous avons bien caractérisé la surface à graver, le film moléculaire, la dose nécessaire de césium, et la cinétique de la gravure. Tous ces paramètres connus, nous avons mené des expériences de lithographie à une échelle sub-micrométrique.

## 4.4 Masques nanométriques

Pour obtenir des motifs d'échelle nanométrique, on peut employer des masques lumineux (voir l'annexe A), ou des masques matériels. Nous décrivons ici les expériences menées sur deux

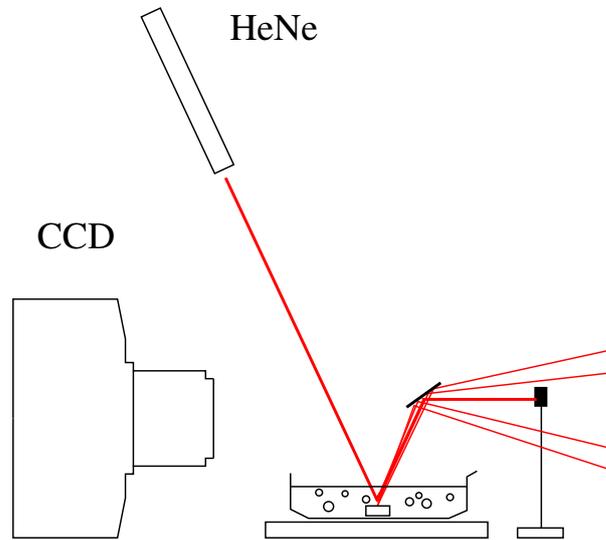


FIG. 4.10: Dispositif expérimental de mesure indirecte du temps de gravure.

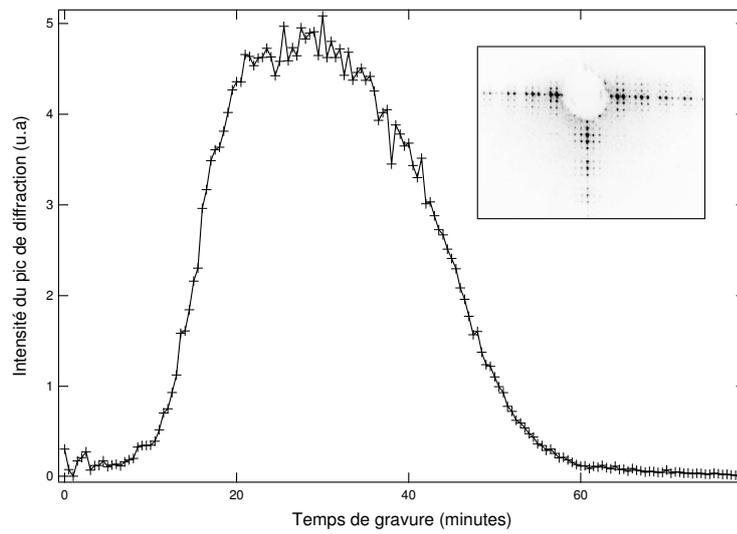


FIG. 4.11: Intensité du pic de diffraction d'ordre 5.

types de masques nanométriques : un réseau carré de trous de section circulaire et un réseau de masques pyramidaux.

#### 4.4.1 Réseau de trous

Ce premier type de masques est constitué d'un réseau carré de trous de période 800 nm et de diamètre 300 nm gravés sur un film d'argent auto-suspendu. Le schéma de la figure 4.4.1 décrit le procédé de fabrication de ces masques. Ils ont été réalisés par H. Lezec, à l'ISIS, dans l'équipe de T. Ebbesen. Un film d'argent est déposé sur une membrane de nitrure de silicium suspendue sur une galette de silicium. Un faisceau d'ions collimaté permet ensuite de retirer la couche de SiN dans la région centrale, puis de graver la structure choisie. Pour assurer une stabilité suffisante de la membrane, on grave seulement  $20 \times 20$  zones de  $16 \times 16$  trous, espacées de 10  $\mu\text{m}$ .

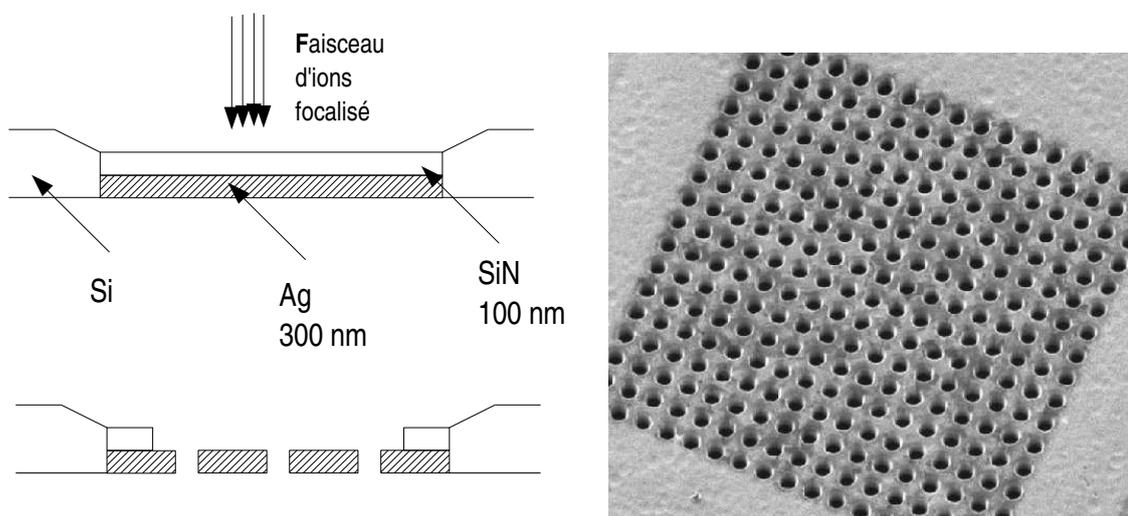


FIG. 4.12: Procédé de fabrication du réseau de trou.

#### Motifs obtenus

Les différentes caractérisations menées avec une grille nous ont permis de réaliser les premières expériences d'exposition avec le masque de taille nanométrique décrit ci-dessus. Après une exposition de 20 minutes au jet de césium et la gravure du substrat, on obtient les motifs dont l'image par microscope à force atomique est donnée sur la figure 4.13. On peut observer l'un des carrés de  $25 \times 25$  trous. On devine le réseaux de trous, mais les motifs sont mal définis et se superposent.

Dans cette première expérience de lithographie à travers le réseau de trous, les ouvertures étaient situées à 0,6 mm du substrat du fait de la géométrie du support en silicium de la membrane auto-suspendue, comme illustré dans la figure 4.14. Du fait de la divergence résiduelle du jet de césium (0,5 mrad dans ces expériences) les atomes traversant un trou de 300 nm de

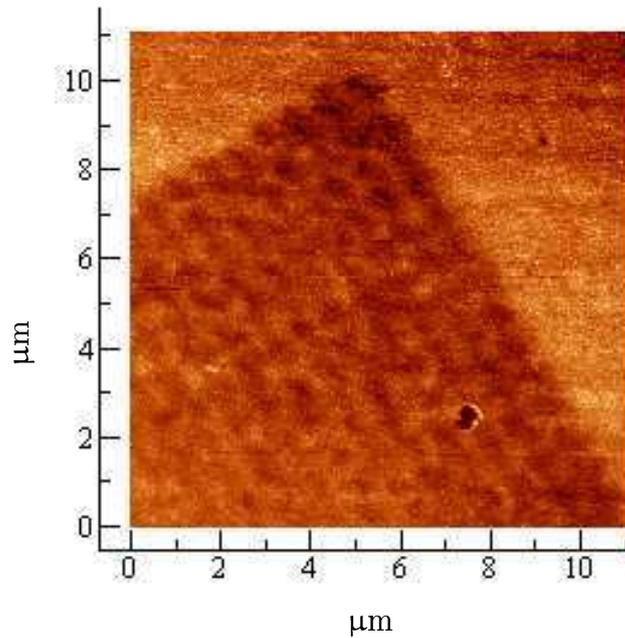


FIG. 4.13: Surface d'or gravée après une exposition de 20 minutes du SAM à travers un réseau de trous nanométriques.

diamètre forment une tâche de 900 nm de diamètre à hauteur de la résine. Comme la période du réseau de trous est de 800 nm, on ne peut pas distinguer clairement chaque trou obtenu.

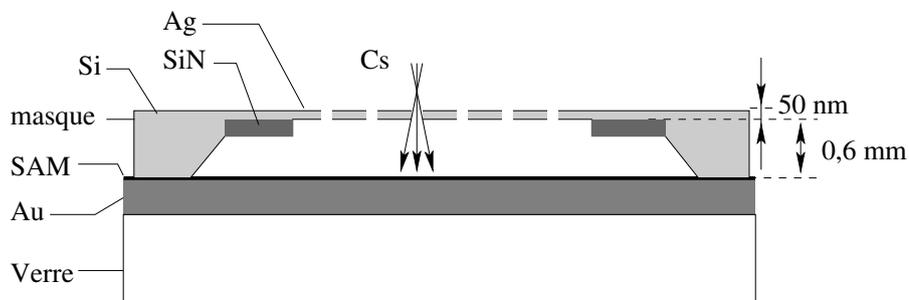


FIG. 4.14: Schéma des positions relatives du masque et de l'échantillon à graver.

Nous avons repris cette expérience en retournant le masque mais aucun motif n'a été observé après cette deuxième exposition. On observe en effet un phénomène de bouchage rapide de ce type de masque, comme le montrent les images obtenues par microscopie électronique à balayage (MEB) présentées ci-après.

### Bouchage

Un masque a été imagé par MEB après trois expositions au césium de 20 minutes. On voit clairement sur les images l'accumulation de parasites sur la surface (voir la figure 4.15). La qualité des motifs obtenus est fortement détériorée.

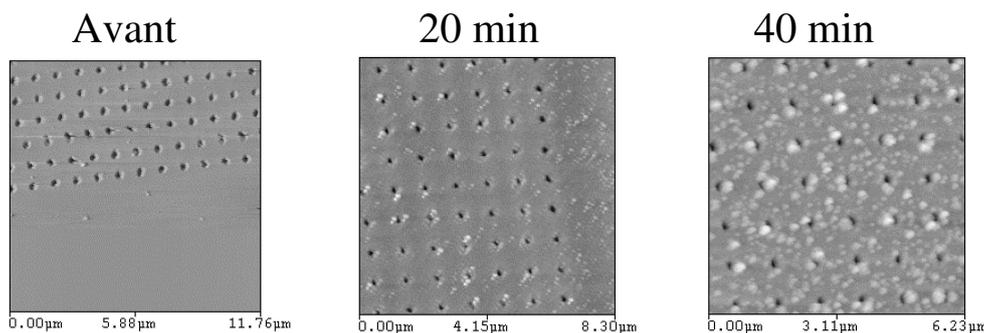


FIG. 4.15: Images MEB du réseau de trous employé pour la lithographie avant l'exposition et après 20 et 40 minutes d'exposition.

Le côté de la membrane imagé est celui qui fait face au jet et reçoit le flux de césium. À chaque exposition, le masque est sorti du dispositif de vide et exposé à l'air. Il est possible que cette exposition à l'air – et l'oxydation du césium qu'elle entraîne – favorise l'accumulation de matière, dont la composition chimique et l'origine précise ne sont cependant pas connues.

Ce dispositif expérimental ne semble donc pas adapté à la lithographie atomique. D'autres types de masques matériels de géométrie différente ont été étudiés, qui devraient permettre de minimiser ce problème de bouchage.

#### 4.4.2 Masques pyramidaux

Ces masques ont été réalisés par l'équipe de E. Oesterschultze à l'Institut de Micro-technologie et d'Analyse de l'université de Kassel [26]. Ils sont constitués d'un réseau d'ouvertures nanométriques percées à l'apex de pyramides à base carrée de 22  $\mu\text{m}$ , les sommets étant séparés de 25  $\mu\text{m}$ . Ces objets sont obtenus par le procédé suivant :

1. Les pyramides sont creusées dans une galette de silicium dopé  $p$  et orientée (001) par une gravure chimique anisotrope dans une solution de KOH à température ambiante.
2. Cette opération est suivie par une étape de *steam oxydation*<sup>12</sup> à 1273 K pour former une couche de 200 nm de  $\text{SiO}_2$  sur la face gravée.
3. Une gravure par ion réactif (*Reactive Ion Etching*, RIE) est ensuite appliquée. Cette nouvelle étape est elle aussi anisotrope, la vitesse de gravure étant plus importante selon la normale au plan de la galette de silicium. L'apex de la pyramide est ouvert sélectivement. La taille de l'ouverture de 100 à 400 nm, est contrôlée par les paramètres de l'expérience.
4. L'autre face de la galette est enfin partiellement enlevée, de manière à dégager le sommet de la pyramide.

Les différentes dimensions d'un échantillon sont données sur la figure 4.4.2.

La figure 4.17 montre des images obtenues par microscope électronique à balayage de l'une de ces structures.

<sup>12</sup>Ce procédé consiste à plonger le semi-conducteur dans un jet de vapeur d'eau.

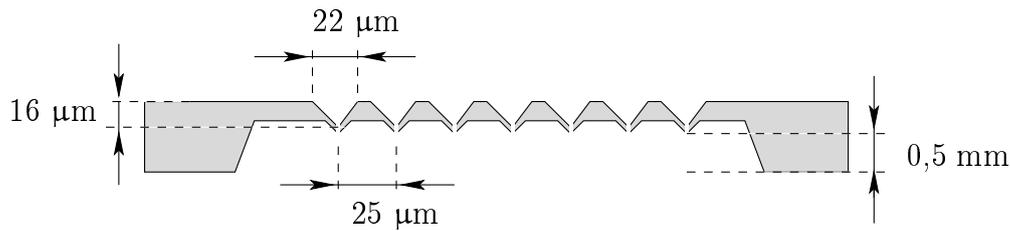


FIG. 4.16: Schéma d'un échantillon d'ouvertures pyramidales.

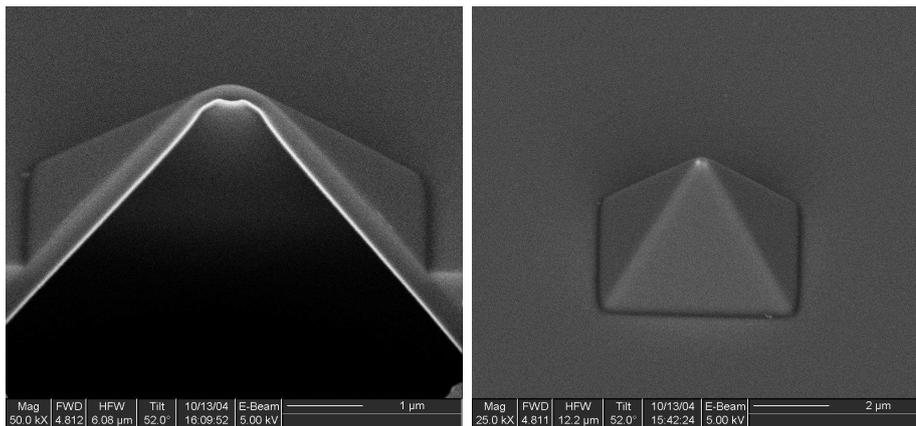


FIG. 4.17: Images MEB d'une pyramide du réseau de masque employé.

### Motifs obtenus

Nous avons réalisé des expériences selon les deux orientations possibles de ces pyramides : avec l'apex pointant vers la surface à graver (orientation en aval) et face à la source de césium (orientation en amont).

Dans le premier cas, la distance entre le SAM et l'ouverture est de l'ordre de  $400\mu\text{m}$ . Après une première exposition, on obtient un réseau de trous de  $800\text{ nm}$  de diamètre environ, dont les parois sont assez mal définies, avec une pente de l'ordre de  $10^\circ$  par rapport au plan du substrat. Après la deuxième exposition, la taille des motifs est réduite à environ  $500\text{ nm}$ . On a donc un effet de bouchage rapide, la taille du motif a diminué de  $300\text{ nm}$  entre les deux expositions. Si on suppose que la taille des ouvertures a diminué dans les mêmes proportions, elle est donc passée de  $300\text{ nm}$  à  $190\text{ nm}$ . Deux exemples de trous gravés dans l'or et imagés par AFM sont donnés sur la figure 4.18.

Dans l'orientation amont, la distance entre l'ouverture et le SAM ne vaut plus que  $16\mu\text{m}$ . On obtient donc des motifs plus petits, et mieux définis, comme illustré dans la figure 4.19. Après la première exposition, les trous observés font  $280\text{ nm}$  de diamètre et la pente des parois est ici de l'ordre de  $45^\circ$  : le diamètre du trou est réduit à  $200\text{ nm}$  au fond du trou, soit à une profondeur de  $40\text{ nm}$ . On ne pourra donc pas réaliser des motifs bien définis de inférieures à  $40\text{ nm}$ .

Après la deuxième exposition, les trous ne font plus que  $250\text{ nm}$ . La taille de l'ouverture n'aurait donc diminué que de  $10\%$ , contre  $35\%$  dans l'autre configuration. Le bouchage est

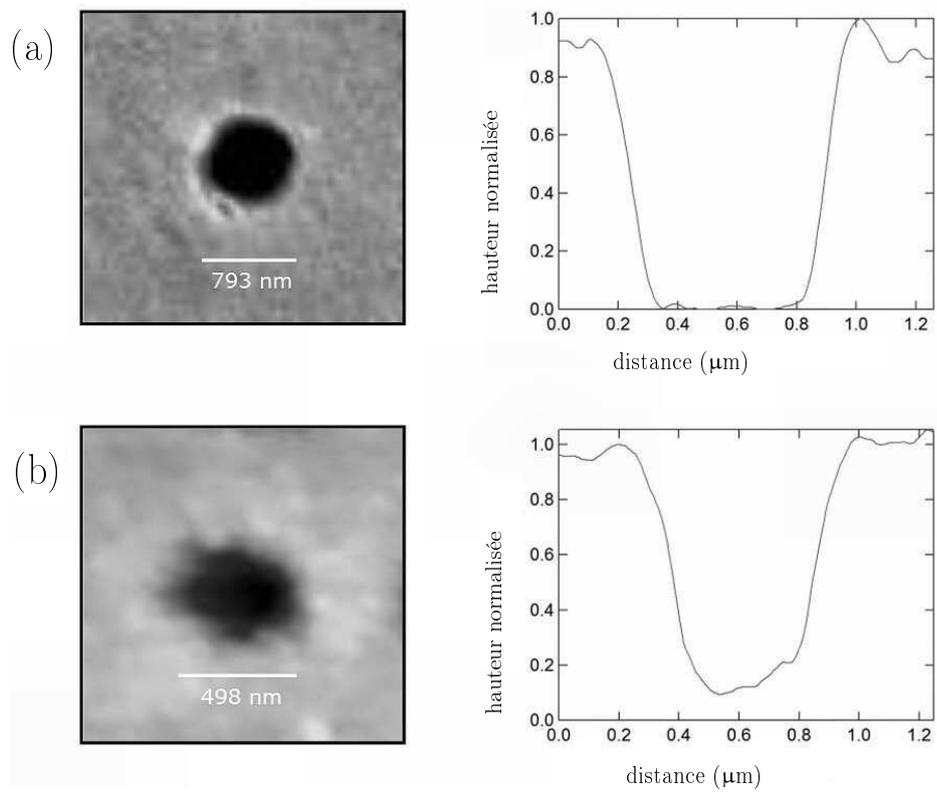


FIG. 4.18: Motif obtenu avec un masque pyramidal orienté en aval, après une (a) et deux (b) expositions de 20 minutes au flux de césium.

donc beaucoup moins rapide. On peut penser que la pyramide se comporte dans ce cas comme un “micro-écorceur”, les atomes qui s’accumulent sur les faces extérieures de la pyramides ne pouvant pas boucher le trou, contrairement à l’orientation aval.

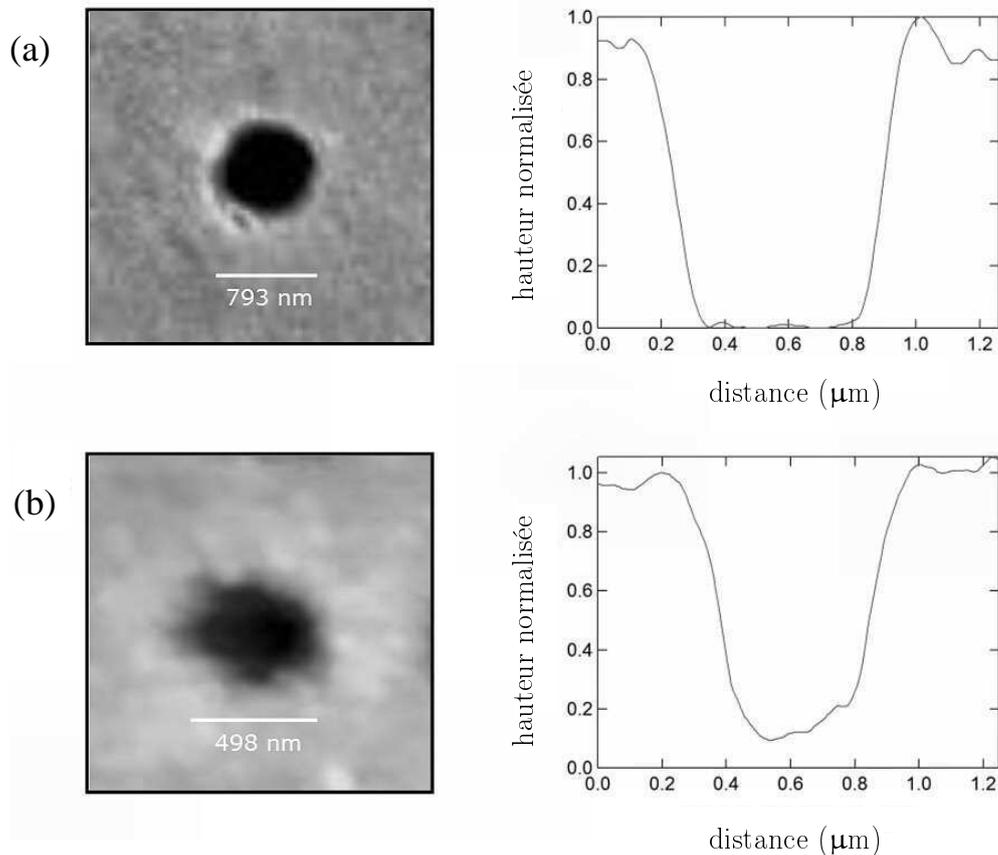


FIG. 4.19: Motif obtenu avec un masque pyramidal orienté en amont, après une (a) et deux (b) expositions de 20 minutes au flux de césium.

### Bouchage ?

Les vitesses de bouchage présentées ici sont trop importantes pour envisager l’utilisation de ces masques pour la lithographie de motifs plus complexes, qui demanderaient une exposition plus importante au flux de césium. Mais dans ces expériences, d’une part le support du substrat et du masques ne permettaient pas un bon pompage de la région d’exposition, ce qui a pu favoriser l’accumulation de “déchets” sur les ouvertures et d’autre part le réseau de masques était exposé à l’atmosphère entre les expériences, permettant ainsi l’oxydation du césium. Des expériences préliminaires ont été menées en détectant par fluorescence les atomes traversant librement le masque, chauffé par effet Joule vers 80°C. Ces mesures semblent indiquer qu’il n’y a pas de bouchage dans cette situation. Ces observations doivent encore être confirmées, mais elles laissent penser qu’une meilleure maîtrise du mode opératoire permettrait d’éviter ces problèmes, pour éventuellement réaliser un “stylet atomique”, dont nous discutons dans la

conclusion de cette partie.

## 4.5 Conclusion

Le jet de césium présenté dans les premiers chapitres de ce mémoire a été appliqué à des expériences de nano-lithographie atomique sur des mono-couches moléculaires auto-assemblées. Nous avons caractérisé les cinétiques des différentes étapes du procédé de gravure, puis nous avons étudié l'utilisation de deux types de masques nanométriques. Avec les masques pyramidaux, nous avons obtenus des motifs de 280 nm et 40 nm de profondeur gravés sur le substrat d'or.

Une fois comprise et maîtrisée le processus de lithographie, l'étape suivante envisagée dans notre projet de recherche est la réalisation d'un dispositif permettant la réalisation de structures arbitraires en déplaçant le masque devant le substrat ou inversement. On peut pour cela employer une plate-forme de translation à cristal piezo-électrique, qui permet de contrôler des déplacements avec une précision sub-nanométrique sur plusieurs dizaines de micromètres. Des expériences dans ce sens ont déjà été réalisées par l'équipe de D. Meschede avec une source de césium différente [27] : le jet de césium est ici focalisé par une lentille magnétique, et les motifs sont obtenus en déplaçant l'hexapôle magnétique. Dans notre équipe, la réalisation d'un dispositif permettant de déplacer le masque par rapport au substrat a commencé, notamment par la réalisation des éléments mécaniques nécessaires. Le temps a malheureusement manqué à la mise en œuvre des premières expériences. En outre, dans l'état actuel du dispositif expérimental, le temps d'exposition d'un élément de surface au jet est de 15 minutes. Dans le cas du stilet atomique, cela signifie que chaque pixel du motif devrait être exposé 15 minutes, ce qui limite fortement la complexité des motifs réalisables dans un temps raisonnable. Il serait donc souhaitable d'augmenter sensiblement le flux de césium (voir la discussion du paragraphe 3.3.8).

Remarquons que ce problème est moins pressant dans le cas d'une lentille en onde stationnaire. Les atomes sont alors collectés sur toute une section du jet, et le flux est localisé sur les points focaux. On peut évaluer cette augmentation de la densité de flux en considérant que les rapports cycliques obtenus dans les expériences de focalisation par un faisceau rétro-réfléchi sont typiquement de 1 : 10 [7], la densité de flux est donc augmentée d'un facteur dix au point focal.

Mais les masques matériels ont l'avantage de fournir une grande variété de forme et une définition seulement limitée par leur méthode de fabrication (soit moins d'une dizaine de nanomètres avec des faisceaux d'ions ou d'électrons) et leur position est facilement contrôlable avec une précision nanométrique. Les masques optiques permettent quand à eux de collecter les atomes et leurs propriétés peuvent être modifiées simplement et "en direct". Est-il possible de combiner ces deux familles pour profiter de tous ces avantages en même temps ? C'est-à-dire, est-il possible de réaliser un masque matériel éclairé par un champ laser de telle façon que la lumière diffractée agisse comme collecteur d'atomes ?

C'est en cherchant à répondre à cette question que nous nous sommes intéressés aux expériences de T. Ebbesen, et aux phénomènes de transmission de la lumière par des ouvertures sub-longueurs d'onde, que nous aborderons dans la deuxième partie



Deuxième partie

Réponse optique d'ouvertures  
sub-longueur d'onde



# Introduction

La maîtrise des méthodes de fabrication aux échelles nanométriques au cours des dernières décennies a ouvert un vaste champ de recherche en optique : cristaux photoniques, métamatériaux, guides d'ondes... Ces objets ont des tailles caractéristiques inférieures ou comparables aux longueurs d'onde de la lumière visible. Les champs optiques évanescents entrent dès lors naturellement en jeu dans la description de leurs propriétés [28].

Une catégorie de tels éléments optiques nanostructurés est formée par les films minces métalliques décorés de motifs sub-longueur d'onde, dont les caractéristiques optiques sont largement explorées depuis la parution de l'article de T.W. Ebbesen et ses collaborateurs en 1998 [29]. Cette équipe a observé que le spectre de transmission d'un réseau de trous de 150 nm de diamètre et 600 nm de période percé dans un film métallique présentait des résonances à des longueurs d'onde supérieures à la période du réseau, le taux de transmission étant alors supérieur à la fraction ouverte du film métallique. Par la suite, la réponse optique d'une grande variété de dispositifs sub-longueur d'onde a été étudiée. Si les réseaux en transmission permettent de moduler spectralement la lumière transmise, d'autres dispositifs sont destinés plus spécifiquement à créer des champs optiques structurés spatialement [30].

Ces derniers éléments optiques sont susceptibles d'être employés comme sources de potentiels dipolaires pour des atomes (voir le paragraphe I-1.3.2). Ils pourraient alors compléter la gamme des outils de manipulation atomique près des surfaces déjà existants, dont on peut donner quelques exemples :

- En tant que *guides* dipolaires, les champs optiques produits à travers ces ouvertures pourraient s'intégrer, comme nous l'avons déjà noté, à des masques matériels utilisés en lithographie. Ils s'ajouteraient aux guides diélectriques en anneaux étudiés par G. Lévêque dans notre équipe pour réaliser des “entonnoirs à atomes” [31].
- En tant que sources de *pièges* dipolaires, les ouvertures sub-longueur d'onde gravées sur des miroirs métalliques compléteraient les expériences de piégeage près des surfaces actuellement développées dans diverses équipes de recherches. W. Ertmer et ses collaborateurs à Hannover piègent des atomes froids dans des faisceaux lasers focalisés par des réseaux de micro-lentilles [32], et l'équipe de E. Hinds à Londres s'intéresse à l'emploi de cavités optiques microscopiques pour piéger des atomes [33]. En parallèle de ces dispositifs optiques, des recherches sont menées sur des pièges magnétiques près des surfaces, à Heidelberg, dans l'équipe de J. Schmiedmayer [34] où à Orsay, dans l'équipe de A. Aspect [35], par exemple. Dans ces dispositifs, des pièges magnétiques sont réalisés par des courants circulant dans des fils d'or de section nanométrique. Ces fils déposés sur une surface sont noyés dans un film isolant puis recouverts d'une couche d'or, sur laquelle est produite un gaz d'atomes froid (ou un condensat de Bose Einstein), à partir d'un piège

magnéto-optique en miroir. Les pièges magnétiques sont typiquement situés quelques dizaines de micromètres au dessus du miroir. Des simulations [36] montrent que le champ optique issu d'ouvertures sub-longueur d'onde décorées permet d'obtenir des maxima d'intensité à des distances comparables. Un piège magnéto-optique en miroir est développé dans notre équipe par O. Alloschery et R. Mathevet et les premières expériences de piégeage d'atomes dans des potentiels dipolaires issus de structures gravées sur le miroir du piège sont en cours. Ces premières structures sont formées par des lentilles de Fresnel macroscopiques.

Mais, avant de pouvoir dessiner et employer des structures adaptées à la manipulation d'atomes, il était nécessaire de mieux comprendre les principes physiques en jeu, et d'avoir une estimation quantitative des différentes grandeurs pertinentes pour nos applications : taux de transmission, dimensions caractéristiques des éléments et des champs optiques produits. Notre travail s'est donc partagé entre l'étude de certains de ces éléments optiques en tant que sources de pièges et guides dipolaires d'une part, et une étude plus fondamentale de leurs propriétés optiques d'autre part.

Nous donnons dans le premier chapitre un bref aperçu des modèles existant dans la littérature pour décrire les processus en jeu dans les phénomènes de transmission de la lumière par des motifs sub-longueur d'onde métalliques (chapitre 1). Nous verrons que la transmission de la lumière par ces ouvertures peut être analysée en termes d'accord de modes entre les différentes régions d'un élément donné. Nos premières expériences d'interaction entre des atomes et les champs émis par des fentes décorées de motifs périodiques sont rapportées dans le chapitre 2 : dans le but de caractériser les champs optiques issus de ces éléments à des distances de quelques dizaines de micromètres de l'ouverture, nous avons développé un dispositif de microscopie par imagerie de fluorescence. Nous présenterons la méthode d'imagerie employée et son application. Les informations obtenues par ces mesures ont fait apparaître les contraintes et limitations de cette classe d'éléments, notamment leur taux de transmission très faible. Il nous a donc paru nécessaire d'avoir à disposition un modèle assez simple du fonctionnement de ces éléments optiques et une compréhension suffisante des processus en jeu, pour être ensuite à même de dessiner les éléments les plus utiles à la manipulation d'atomes froids. Nous souhaitons d'autre part confronter le modèle analytique simple développé par H. Lezec [37] à des mesures expérimentales. Dans cette optique, nous avons mené des expériences de mesure du champ lointain issu de structures simples, non périodiques. Nous avons étudié la modulation spatiale de l'intensité des ces éléments avec une source laser continue et monochrome. Un nombre important d'échantillons de géométries différentes ont été étudiés. Les résultats obtenus montrent la richesse des phénomènes observables même dans des éléments simples (chapitres 3 et 4).

# Chapitre 1

## Transmission de la lumière par des structures sub-longueur d'onde

Nous présentons dans ce chapitre les mécanismes de transmission de la lumière par des ouvertures sub-longueur d'onde gravées dans des films métalliques, en nous appuyant sur la littérature existante sur le sujet, sans toutefois prétendre faire une étude exhaustive, qui dépasserait le cadre de ce travail. En premier lieu, nous décrirons les propriétés élémentaires communes à l'ensemble des structures étudiées. Nous commencerons par le comportement d'un champ électromagnétique à une interface métal/diélectrique plane et lisse, en précisant la notion clef de plasmon polariton de surface. Nous examinerons ensuite les modèles décrivant la diffraction de la lumière par une ouverture sub-longueur d'onde unique dans un film mince, pour divers niveaux d'approximation et selon des géométries différentes.

Les propriétés d'un film métallique sont notablement modifiées par l'introduction d'une structure périodique. Nous verrons donc comment est analysée la réponse optique d'un réseau d'ouvertures. L'origine physique des caractéristiques spectrales observées a été largement débattue ces dernières années. Deux approches assez contrastées se sont opposées :

- la description “plasmonique” privilégiant l'excitation aux interfaces de modes plasmon polaritons de surface [38, 39, 40].
- la description “diffractive” considérant plutôt la contribution cohérente de chaque élément du réseau au champ total [41, 42, 37].

L'introduction d'une analogie avec la théorie de Fano de la diffusion atomique en mécanique quantique permet d'obtenir une description synthétique du phénomène [43, 44].

Une autre classe d'éléments est composée de motifs hybrides : ouvertures uniques entourées de sillons périodiques ou doublets de fentes, dans laquelle s'inscrivent les études expérimentales menées ici. Ces éléments sont conçus pour produire plus spécifiquement une modulation spatiale de l'intensité des champs lumineux, dont nous détaillerons le mécanisme. Nous présenterons enfin deux exemples parmi de nombreuses autres d'applications employant cette nouvelle famille d'éléments optiques.

## 1.1 Processus élémentaires

Nous nous attacherons d'abord à expliciter les processus élémentaires en jeu dans les descriptions qui suivront. Il s'agit en premier lieu de décrire le comportement d'une surface métallique exposée à un champ électromagnétique dans le domaine optique.

### 1.1.1 Champ électromagnétique à une interface métal/diélectrique

#### Rappels

Les équations de Maxwell sont à la base de tous les modèles donnés par la suite. Pour un milieu non magnétique, dans le système d'unités MKS, on a

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (1.1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\varepsilon_0} \quad (1.2)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (1.3)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial(\varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P})}{\partial t} \quad (1.4)$$

Dans ces équations  $\mathbf{J}$  est la densité locale de courant,  $\rho$  la densité de charge. On a en outre les équations constitutives en régime linéaire :

$$\mathbf{H} = \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} \quad \text{pour un milieu non magnétique} \quad (1.5)$$

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \varepsilon_0 \chi \mathbf{E} = \varepsilon \mathbf{E} \quad (1.6)$$

où  $\chi$  est la susceptibilité du milieu et  $\varepsilon$  sa permittivité. On définit la permittivité relative  $\varepsilon_r = \varepsilon/\varepsilon_0 = 1 + \chi$ , aussi appelée fonction diélectrique.

Dans le volume d'un métal ou d'un diélectrique,  $\mathbf{J}$  et  $\rho$  sont nuls. Ce n'est pas vrai à une interface métal/diélectrique, où un champ électromagnétique incident crée des courants de surface, et où des charges peuvent s'accumuler au voisinage d'une discontinuité. Pour une description très didactique et complète du comportement d'une onde électromagnétique se réfléchissant sur une surface métallique, on se rapportera à l'introduction de l'article de A.R. Zakharian, M. Mansuripur et J.V. Moloney [45], qui traite de la transmission de la lumière par des ouvertures elliptiques.

À partir de ces équations, et en décrivant le métal comme un plasma d'électrons de conduction se propageant avec un certain taux de collisions dans un réseau, dans le modèle de Drude [46, 47], on peut décrire le comportement d'un champ électromagnétique à une interface métal/diélectrique, c'est-à-dire déterminer une expression de la relation de dispersion à cette interface.

#### Modèle de Drude

On considère les électrons de conduction d'un métal dans le cadre d'un modèle de Drude. Le gaz d'électrons a une densité  $n$  et un temps moyen entre deux collisions  $\tau$ .

En négligeant la force de Lorentz, l'équation du mouvement d'un électron dans un champ électrique :

$$\begin{aligned} m_e \ddot{x} &= -\frac{m_e \dot{x}}{\tau} - eE \quad \text{soit} \\ m_e \omega^2 (x - x_0) &= i \frac{m_e \omega}{\tau} (x - x_0) + eE \end{aligned} \quad (1.7)$$

en régime harmonique.

En statique,  $\ddot{x} = 0$ , et on a un courant  $j = ne\dot{x} = \sigma E$  où  $\sigma = ne^2\tau/m$ . La mesure de la conductivité  $\sigma$  permet alors de déterminer  $\tau$ .

Le vecteur polarisation  $\mathbf{P}$  est défini comme la densité de dipôle induits :

$$\mathbf{P} = ne(x - x_0)$$

soit d'après l'équation (1.7),

$$\mathbf{P} = -\frac{ne^2}{m_e \omega^2 + i \frac{m_e \omega}{\tau}} \mathbf{E} \quad (1.8)$$

D'autre part, par définition du vecteur déplacement,  $\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \varepsilon_0 \varepsilon_m(\omega) \mathbf{E}$ , la fonction diélectrique complexe du métal  $\varepsilon_m(\omega) = \varepsilon'_m + i\varepsilon''_m$  vérifie donc :

$$\varepsilon_m(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{1}{1 - i/\omega\tau} \simeq 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} (1 + i/\omega\tau) \quad \text{avec } \omega_p = ne^2/\varepsilon_0 m_e \quad (1.9)$$

On a négligé ici  $(1/\omega\tau)^2$  de l'ordre de  $10^{-4}$  aux fréquences optiques.

La pulsation  $\omega_p$  est appelée pulsation plasma et la longueur d'onde associée est de l'ordre de 300 nm pour les métaux nobles. Pour des pulsations supérieures à  $\omega_p$ , le milieu est transparent et la partie réelle de la fonction diélectrique est positive,  $Re(\varepsilon_m) > 0$ . En dessous de cette fréquence,  $Re(\varepsilon_m) < 0$ , il n'existe pas de mode propagatif pour le champ électromagnétique dans le métal. Pour  $\omega = \omega_p$ ,  $Re(\varepsilon_m)(\omega) = 0$ , il existe un mode transverse stationnaire, le plasmon de volume, qui est le quantum d'excitation collective des électrons du métal, et peut être vu comme une modulation périodique de la densité électronique.

Si on considère maintenant un champ se réfléchissant à une interface entre un milieu diélectrique de permittivité  $\varepsilon_1$  et un métal de permittivité relative  $\varepsilon_m = \varepsilon'_m + i\varepsilon''_m$ , on montre que le champ à l'intérieur du métal s'écrit

$$E(z) = \exp(-z/\delta) \cos(\omega t - z/\delta)$$

où  $\delta = \sqrt{2/\mu_0 \omega \sigma}$  est l'épaisseur de peau du métal. Le champ est pratiquement nul à une profondeur de quelques  $\delta$ , soit quelques dizaines de nanomètres dans le domaine optique pour des métaux usuels. Le tableau 1.1 donne les valeurs expérimentales de ces constantes pour l'argent, d'après P. Johnson et R. W. Christy [48]. Nous allons maintenant voir qu'il existe aussi un mode propre du champ confiné à l'interface métal/diélectrique et évanescence selon  $z$  dans les deux milieux, appelé plasmon polariton de surface.

Constantes du métal		
densité électronique	$n$	$5,9 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$
temps de relaxation	$\tau$	$31 \pm 12 \cdot 10^{-15} \text{ s}$
conductivité statique	$\sigma_0$	$6,3 \cdot 10^7 \Omega^{-1} \text{ m}^{-1}$
pulsation plasma	$\omega_p$	$8,85 \cdot 10^{15} \text{ Hz}$
Données à 852 nm		
permittivité relative	$\epsilon'_m + i\epsilon''_m$	$-33,3 + i 1,31$
indice de l'interface	$n'_{sp}$	1,015
profondeur de peau	$\delta$	8,5 nm
portée du champ évanescent dans l'air	$\hat{z}_1$	800 nm
portée du champ évanescent dans le métal	$\hat{z}_m$	23 nm

TAB. 1.1: Constantes utiles pour l'argent métallique, d'après P. Johnson et R. W. Christy [48]. La permittivité relative à 852 nm a été mesurée par H. Lezec à Caltech par ellipsométrie sur les films métalliques que nous avons employés dans nos études.

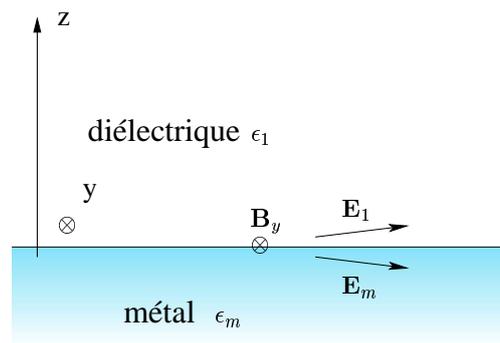


FIG. 1.1: Interface diélectrique/métal

### Plasmon polariton de surface

On considère des champs harmoniques de pulsation  $\omega$ . Supposons qu'il existe à l'interface une onde évanescente selon  $z$  avec des portées  $\hat{z}_1$  et  $\hat{z}_m$  dans le métal et le diélectrique, respectivement. Nous allons montrer que la relation de dispersion associée à un tel champ est unique.

Ce champ se propage selon  $x$  (voir la figure 1.1.1). Le champ magnétique est parallèle à  $\mathbf{e}_y$ , et ne dépend pas de  $y$ . On écrit alors :

$$\mathbf{H} = \begin{cases} (0, H_{y1}, 0)e^{-i\omega t} \exp(ik_{sp1}x - \kappa_1 z) & \text{pour } z > 0 \\ (0, H_{ym}, 0)e^{-i\omega t} \exp(ik_{spm}x + \kappa_m z) & \text{pour } z < 0 \end{cases} \quad (1.10)$$

$$\mathbf{E} = \begin{cases} (E_{x1}, 0, E_{z1})e^{-i\omega t} \exp(ik_{sp1}x - \kappa_1 z) & \text{pour } z > 0 \\ (E_{xm}, 0, E_{zm})e^{-i\omega t} \exp(ik_{spm}x + \kappa_m z) & \text{pour } z < 0 \end{cases} \quad (1.11)$$

où  $\kappa_1$  et  $\kappa_m$  sont des réels positifs, avec  $\kappa_1 = 1/\hat{z}_1$  et  $\kappa_m = 1/\hat{z}_m$  et  $k_{sp1}$  et  $k_{spm}$  des complexes.

Ce champ doit vérifier les équations de Maxwell et les conditions aux limites du problèmes :

$$H_{y1} = H_{ym} \quad \text{continuité du champ magnétique transverse} \quad (1.12)$$

$$E_{x1} = E_{xm} \quad \text{continuité du champ électrique longitudinal} \quad (1.13)$$

$$\varepsilon_1 E_{z1} = \varepsilon_m E_{zm} \quad \text{continuité de la composante normale du vecteur déplacement} \quad (1.14)$$

Pour une pulsation  $\omega$  donnée, ces contraintes imposent une relation de dispersion unique pour le champ de surface. D'après (1.13),

$$E_{x1} \exp(ik_{sp1}x) = E_{xm} \exp(ik_{spm}x) \forall x \Rightarrow k_{sp1} = k_{spm} = k_{sp} \quad (1.15)$$

D'autre part, d'après (1.4), avec  $j \in \{1, m\}$  :

$$\begin{aligned} \frac{\partial H_{yj}}{\partial z} &= -i\omega \varepsilon_j \varepsilon_0 E_{xj} \\ \text{soit } \kappa_1 H_{y1} &= +i\omega \varepsilon_1 \varepsilon_0 E_{x1} \\ \text{et } \kappa_m H_{ym} &= -i\omega \varepsilon_m \varepsilon_0 E_{xm} \end{aligned} \quad (1.16)$$

On déduit de (1.12) et (1.16) :

$$\kappa_1/\varepsilon_1 + \kappa_m/\varepsilon_m = 0 \quad (1.17)$$

De plus, la relation de dispersion dans le milieu  $j$  s'écrit :

$$k_{sp}^2 - \kappa_j^2 = \varepsilon_j \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \quad (1.18)$$

En combinant les relations (1.17) et (1.18), on obtient la relation de dispersion d'un plasmon polariton de surface, avec  $k_0 = \omega/c$  :

$$k_{sp}^2 = k_0^2 \left( \frac{\varepsilon_1 \varepsilon_m(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon_m(\omega)} \right) \quad (1.19)$$

On écrit en outre  $k_{sp} = k'_{sp} + ik''_{sp} = k_0(n'_{sp} + in''_{sp})$ , où  $n_{sp} = n'_{sp} + in''_{sp}$  est l'indice de réfraction associé à l'interface.

Par exemple, si le milieu 1 est le vide,  $\varepsilon_1 = 1$ , on peut ré-écrire l'équation (1.19) d'après la définition de  $\varepsilon_m$  du modèle de Drude donné par l'équation (1.9) :

$$Re(k_{sp}^2) = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \left[ \frac{2 - 3\left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2 + \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^4 \left[1 + \frac{1}{(\omega\tau)^2}\right]}{\left[2 - \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2\right]^2 + \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2 \frac{1}{(\omega\tau)^2}} \right] \quad (1.20)$$

On peut simplifier cette expression pour un métal de conductivité infinie,  $\tau \rightarrow 0$  :

$$Re(k_{sp}^2) = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \left[ \frac{2 - 3\left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2 + \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^4}{\left[2 - \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2\right]^2} \right] \quad (1.21)$$

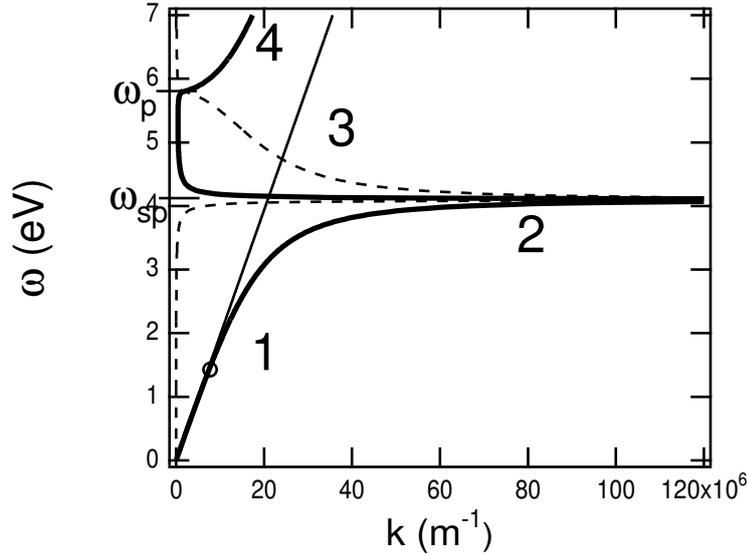


FIG. 1.2: Relation de dispersion d'un plasmon polariton de surface, les longueurs d'ondes sont données pour l'argent. En trait pleins épais : partie réelle de  $k_{sp}$ , en pointillés : partie imaginaire de  $k_{sp}$ . La droite en trait fin a pour équation  $\omega = k/c$ , tous les modes propagatifs sont à gauche de cette ligne. Le cercle indique le domaine du proche infra-rouge où ont lieux nos expériences.

La relation (1.20) présente une résonance quand  $\omega = \omega_p/\sqrt{2} \equiv \omega_{sp}$  appelée résonance plasmon de surface. La densité de modes plasmons polaritons est grande, et on a une oscillation collective des électrons de surface, avec une vitesse de phase qui tend vers zéro.<sup>13</sup> En observant la figure 1.2, on peut distinguer quatre régimes dans cette relation :

1.  $\omega < \omega_{sp}$ ,  $\varepsilon'_m < -\varepsilon_1$  : Caractère polariton dominant, la vitesse de groupe est proche de  $c$ , le champ de surface est propagatif (voir la référence [49]).

<sup>13</sup>Cette résonance se traduira par exemple par un pic d'absorption dans le spectre d'un faisceau d'électrons se réfléchissant à l'interface [46].

2.  $\omega \rightarrow \omega_{sp}$ ,  $\varepsilon'_m \rightarrow -\varepsilon_1$  : Caractère plasmon dominant, la vitesse de groupe des modes est faible, la modulation de densité électronique est quasi-stationnaire.
3.  $\omega_{sp} < \omega < \omega_p$ ,  $k''_{sp} \gg k'_{sp}$ ,  $-\varepsilon_1 < \varepsilon' < 0$  : Régime d'oscillations amorties, l'onde de surface s'atténue rapidement.
4.  $\omega > \omega_p$ ,  $\varepsilon'_m > 0$  : régime transparent pour le métal, le champ n'est plus évanescent.

Dans le domaine optique,  $\omega < \omega_{sp}$ , un plasmon polariton de surface est alors une onde de surface à caractère mixte :

- Une oscillation de la densité de charge près de l'interface.
- Une onde électromagnétique évanescence de vecteur d'onde  $\mathbf{k}_{sp}$  [47]

On se rapportera à l'article de J.A. Dione *et al.* [50] pour une discussion de la relation de dispersion d'un plasmon polariton de surface dans le cas d'un métal réel, les auteurs étudiant cette relation à partir des mesures expérimentales de la constante diélectrique pour les longueurs d'onde de 200 à 2000 nm dans l'argent. On notera en particulier les différences importantes entre la courbe expérimentale donnée dans l'article et celle obtenue avec l'équation (1.21) pour les pulsations supérieures à  $\omega_{sp}$ , pour lesquelles le modèle de Drude n'est plus adapté.

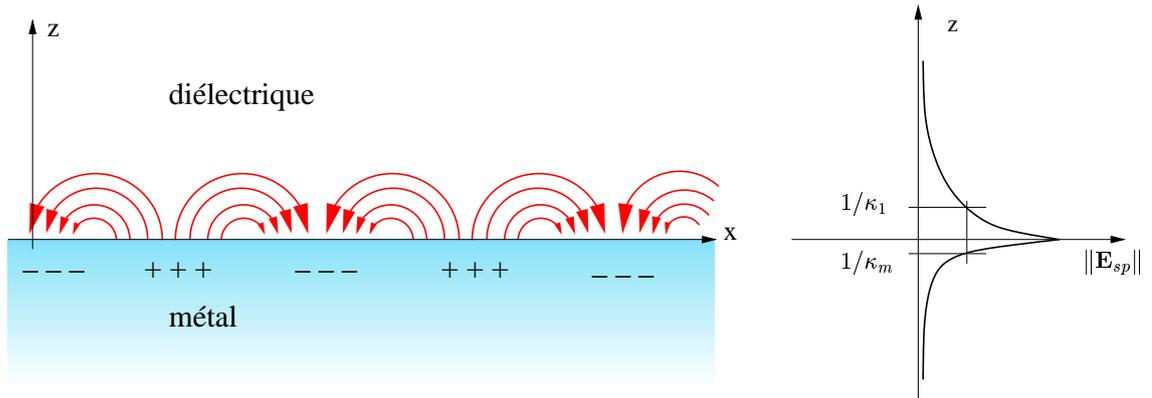


FIG. 1.3: Vue schématique d'un plasmon polariton de surface à une interface métal/diélectrique

On déduit enfin des relations de dispersion (1.18) et (1.19) les portées du champ dans les deux milieux,  $\hat{z}_1$  et  $\hat{z}_m$  sont données par les relations :

$$\hat{z}_1 = \frac{1}{\kappa_1} = \frac{\lambda_0}{2\pi} \left( \frac{\varepsilon'_m + \varepsilon_1}{\varepsilon_1^2} \right)^{1/2} \quad \text{et} \quad (1.22)$$

$$\hat{z}_m = \frac{1}{\kappa_m} = \frac{\lambda_0}{2\pi} \left( \frac{\varepsilon'_m + \varepsilon_1}{\varepsilon_m^2} \right)^{1/2} \quad (1.23)$$

Soit, dans le cas de l'argent à  $\lambda = 852$  nm,  $\hat{z}_1 \simeq 800$  nm et  $\hat{z}_m \simeq 23$  nm. Nous allons voir maintenant comment on peut coupler un champ optique radiatif au mode guidé que nous venons de décrire.

## Couplage à un champ optique

Pour une fréquence  $\omega < \omega_{sp}$  donnée, la norme du vecteur d'onde d'onde plasmon  $k'_{sp}$  est supérieure à  $k_0$ . Autrement dit, le vecteur d'onde est à droite de la "ligne de lumière" d'équation  $\omega = k/c$  sur la figure 1.2. On ne peut donc pas coupler directement une onde plane incidente de fréquence  $\omega$  à un plasmon de surface. Pour cela, il faut "ajouter" au moins un vecteur d'onde  $\delta k_x = k_{sp} - k_0$  au vecteur d'onde incident.

Différentes méthodes de couplage d'un champ incident à un plasmon polariton de surface sont données par H. Raether [47] et dans la revue de A.V. Zayats et I.I. Smolyaninov [49], dont la méthode de couplage par un réseau : pour un champ incident, polarisé TM,<sup>14</sup> et faisant un angle  $\theta$  avec la normale du réseau, le spectre du champ diffracté s'écrit comme une somme de vecteurs d'onde  $\alpha_n(k_0 \sin \theta + n.g)$  où  $g$  est un vecteur du réseau réciproque et  $n$  l'ordre (entier) de diffraction. On peut alors avoir  $n.g = \delta k_x$ .

Le champ diffracté est alors couplé au plasmon polariton de surface.<sup>15</sup> Mais on peut remarquer qu'un défaut de surface quelconque peut se décomposer sur la base de Fourier, c'est-à-dire être assimilé à une superposition de vecteurs de l'espace réciproque qui peuvent "fournir" le vecteur  $\delta k_x$  manquant. C'est en particulier le cas des motifs sub-longueur d'onde étudiés ici, et les plasmons polaritons de surface seront souvent invoqués par la suite pour expliquer les phénomènes (ou une partie des phénomènes) de transmission extraordinaire de la lumière par des ouvertures sub-longueur d'onde.

Notons que le terme plasmon désigne très généralement tout couplage entre les électrons de conduction d'un métal et un champ électromagnétique. Dans le cas de particules métalliques par exemple, on parlera de plasmons de surface localisés. Contrairement aux plasmons polaritons de surface ces modes peuvent être excités directement par la lumière incidente. On parlera parfois de plasmon localisé pour les modes propres à l'intérieur d'une ouverture ou d'un défaut (voir la revue très complète de A.V. Zayats et I.I. Smolyaninov [49]).

### 1.1.2 Diffraction par une fente sub-longueur d'onde

Nous avons décrit ci-dessus le champ évanescent monochromatique guidé sur une surface métallique infinie. Ses propriétés ont été déduites des équations de Maxwell et des conditions aux limites du problème. Il en va de même dans le cas du champ diffracté par une ouverture dans un film métallique. Dans le cas d'une ouverture de taille caractéristique grande devant la longueur d'onde, et à des grandes distances de la surface, on peut utiliser les théories de Huygens-Fresnel ou Kirchoff. Mais dès que les dimensions deviennent comparables à la longueur d'onde, et que des champs évanescents entrent en jeu, ces approximations perdent leur validité. Reste donc la résolution stricte des équations de Maxwell avec les conditions aux limites du problème. Dans le régime sub-longueur d'onde, une résolution analytique n'est possible que dans des cas simples (ouverture elliptique dans un écran métallique parfait infiniment fin par exemple) [51]. On ne peut donc obtenir une description rigoureuse du champ proche qu'à l'aide de calculs numériques intensifs. Certaines approximations permettent cependant un traitement analytique du problème, ou au moins de réduire significativement la complexité des calculs numériques. Ces

<sup>14</sup> $\mathbf{E}_i$  est perpendiculaire au réseau.

<sup>15</sup>La réciproque est évidemment vraie : on peut coupler un plasmon polariton de surface au champ propagatif en diffusant un vecteur d'onde  $\delta k_x$ , comme nous le verrons par la suite.

modèles apportent surtout une interprétation physique des mécanismes en jeu. Nous exposons ici quelques unes de ces approches et leurs implications physiques, en les organisant selon leur degré de réalisme : les premiers modèles décrivent le champ scalaire diffracté par une ouverture sub-longueur d'onde dans un écran opaque (parfaitement conducteur) infiniment fin. On peut ensuite considérer un écran d'épaisseur non nulle, et donner une analyse modale des champs scalaires ou vectoriels en jeu dans un métal parfait, puis enfin dans un métal réel, de conductivité finie. Nous traitons d'abord le cas de la fente unidimensionnelle, puis celui du trou de section circulaire.

## Définitions

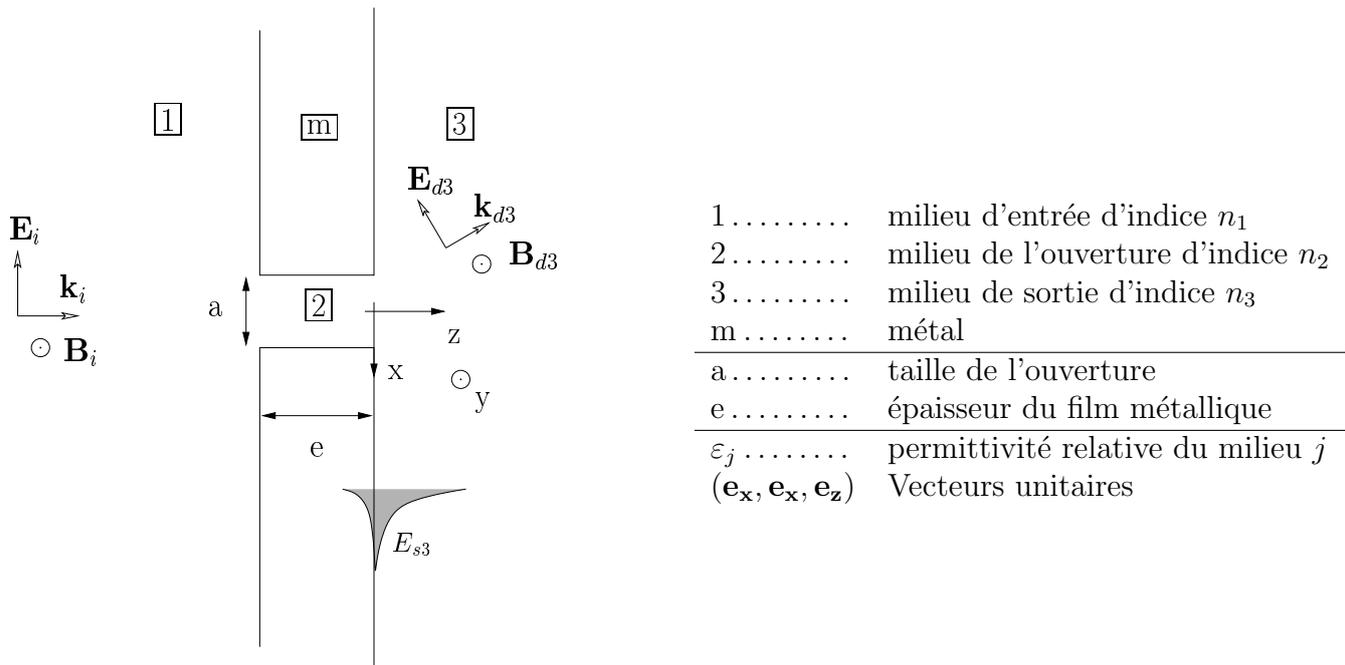


FIG. 1.4: Ouverture sub-longueur d'onde. L'origine du repère  $(x, y, z)$  est prise au milieu de l'ouverture dans le plan  $(x, y)$  et à l'interface 2/3 selon  $z$ .  $(\mathbf{E}_j, \mathbf{H}_j, \mathbf{k}_j)(x, y, z)$  est le champ électromagnétique dans le milieu  $j$ .

Pour les définitions des différentes grandeurs géométriques, voir la figure 1.4. Dans le milieu d'entrée, le champ électrique se décompose en trois termes :

- Le champ incident  $\mathbf{E}_i$ , souvent assimilé à une onde plane,  $\mathbf{E}_i = E_i \exp i(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega t) \mathbf{e}_x$
- Le champ réfléchi en l'absence de motif  $\mathbf{E}_r$
- Le champ homogène diffusé par le motif  $\mathbf{E}_{d1}$

Le champ de surface évanescents selon  $\mathbf{e}_z$  est noté  $\mathbf{E}_{s1}$  ou  $\mathbf{E}_{s3}$  selon l'interface considérée. Le champ à l'intérieur des ouvertures (entre  $z = -e$  et  $z = 0$ ) est noté  $\mathbf{E}_2$ .

On définit le taux de transmission  $T$  comme le rapport de la puissance totale transmise dans le milieu 3 et de la puissance incidente sur l'ouverture (soit l'intégrale du vecteur de Poynting à travers la surface ouverte), corrigé de l'intensité transmise par un film métallique lisse de

même épaisseur (négligeable pour des films d'épaisseur supérieure à 100 nm, comme dans notre cas). Lorsque cela sera nécessaire, nous désignerons d'autre part les taux de transmission en amplitude du champ par des lettres grecques minuscules.

En l'absence d'autre indication on considère une onde plane incidente normale à la surface de vecteur d'onde  $\mathbf{k}_i$  et de pulsation  $\omega$ .

### Fente dans un écran infiniment fin

La première approximation que l'on peut faire consiste à considérer une fente (infinie selon  $y$ ) dans un écran opaque infiniment fin à travers laquelle une onde plane incidente est diffractée, approximation discutée par M. W. Kowarz [52]. L'auteur fait l'hypothèse supplémentaire que le champ électromagnétique est donné en tout point par un champ optique scalaire monochromatique  $V(x, y, t) = E(x, z) \exp(-i\omega t) \quad \forall z > 0$ . Pour connaître le champ dans le milieu de sortie, l'auteur ne cherche pas à déduire les champs  $E_2$  et  $E_{s3}$  des équations de Maxwell à partir d'un champ incident  $E_1$  initial. Il souhaite plutôt évaluer  $E_3$  en propageant une distribution réaliste donnée du champ à l'interface. Il pourra estimer ainsi les contributions respectives des champs évanescents et propagatifs dans le demi-espace de sortie. En  $z = 0$ , M.W. Kowarz considère donc un champ nul partout sauf entre  $-a/2$  et  $+a/2$ , où il est considéré constant.

$$E(x, 0) = \begin{cases} E_0 & \text{pour } |x| \leq a \\ 0 & \text{pour } |x| > a \end{cases} \quad (1.24)$$

Il vérifie l'équation de Helmholtz à deux dimensions dans le demi-espace de sortie :

$$(\nabla^2 + k_0^2) E(x, z) = 0 \quad (1.25)$$

On peut écrire ce champ à partir de sa transformée de Fourier :

$$\begin{aligned} E(x, 0) &= \int_{-\infty}^{\infty} f(k_x) e^{ik_x x} dk_x \quad \text{avec} \\ f(k_x) &\propto \frac{\sin ak_x}{ak_x} \end{aligned} \quad (1.26)$$

$f(k_x)$  est la densité spectrale de l'ouverture, donnée par un sinus cardinal pour la distribution rectangulaire de champ considérée (voir la figure 1.5. Comme  $a < \lambda$ , le spectre de vecteurs  $k_x$  s'étend au-delà de  $k_0$ .

On pose  $k_x = k_0 u_x$ . On distingue ainsi deux situations :

- $|u_x| \leq 1$  : le champ est radiatif où homogène
- $|u_x| \geq 1$  : le champ est évanescent

En effet, la relation de dispersion dans le vide donne  $k_z^2 = k_0^2 - k_x^2 = k_0^2(1 - u_x^2)$ . Si  $u_x < 1$ ,  $k_x < k_0$ , et  $k_z \in \mathbb{R}$ , le champ est radiatif. Si  $u_x > 1$ ,  $k_z$  est imaginaire pur, et le champ est évanescent selon  $z$ . On peut séparer l'expression du champ total dans le milieu 3 en deux termes :

$$E = E_h + E_i \quad (1.27)$$

$$\begin{aligned} E_h(x, z) &= \int_{|u_x| \leq 1} f(u_x) \exp(ik_0 x u_x) \exp \left[ ik_0 z (1 - u_x^2)^{1/2} \right] du_x \\ E_i(x, z) &= \int_{|u_x| > 1} f(u_x) \exp(ik_0 x u_x) \exp \left[ -k_0 z (u_x^2 - 1)^{1/2} \right] du_x \end{aligned} \quad (1.28)$$

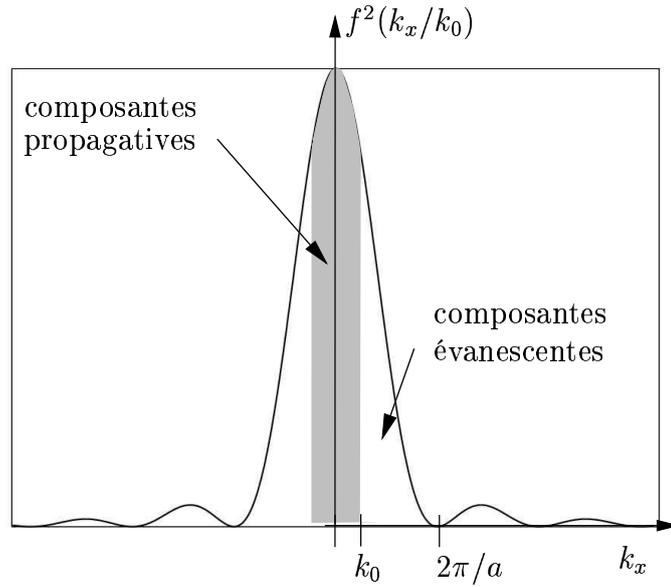


FIG. 1.5: Densité spectrale d'une ouverture de largeur  $a$ . Comme  $a$  est inférieur à la longueur d'onde, une grande partie de cette distribution se situe au delà du régime radiatif entre  $-k_0$  et  $k_0$

Le champ homogène  $E_h$  est la somme des modes radiatifs, et le champ *inhomogène*  $E_i$  regroupe tous les modes évanescents. Les amplitudes de ces différents champs sont représentées sur la figure 1.6.

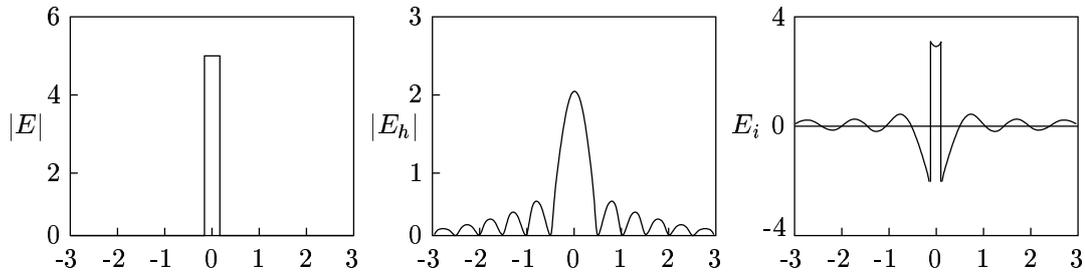


FIG. 1.6: Représentation du champ total et des champs homogènes et inhomogènes en  $z = 0$  selon M.W. Kowarz [52] et les équations (1.28) et (1.28).

Ce calcul, même s'il repose sur des approximations importantes, permet de comprendre comment un spectre large de vecteurs  $k_x$  intervient dans la décomposition spectrale du champ à la surface de l'écran, et les proportions relatives des intensités dans les champs évanescents et homogènes. Le mode plasmon polariton de surface n'apparaît pas, car l'analyse ne porte pas sur un métal mais sur un écran opaque et le champ total est nul à l'interface par hypothèse. Mais on retiendra que des vecteurs d'onde dont la composante selon  $x$  est plus grande que  $k_0$  sont excités. En particulier,  $f(k_{sp}) \neq 0$  *a priori*, or on a vu (§1.1.1) que c'était une condition nécessaire à la création d'un plasmon polariton de surface.

H. Lezec et T. Thio s'appuient sur le calcul de M.W. Kowarz pour développer un modèle analytique de la diffraction par une fente ou un trou circulaire sub-longueur d'onde [37]. Le champ évanescent produit à la surface du métal est alors assimilé à l'intégrale sur les modes scalaires évanescents de l'expression de Kowarz, que l'on peut calculer grâce à la simplicité des expressions obtenues :

$$E_s(x) = -\frac{E_i}{\pi} \left\{ \text{Si} \left[ k \left( x + \frac{a}{2} \right) \right] - \text{Si} \left[ k \left( x - \frac{a}{2} \right) \right] \right\} \text{ pour } |x| > a/2 \quad (1.29)$$

$$= \frac{E_i}{\pi} \left\{ \pi - \text{Si} \left[ k \left( x + \frac{a}{2} \right) \right] + \text{Si} \left[ k \left( x - \frac{a}{2} \right) \right] \right\} \text{ pour } |x| < a/2 \quad (1.30)$$

où

$$\text{Si}[u] \equiv \int_0^u \frac{\sin t}{t} dt$$

désigne le sinus intégral. H. Lezec et T. Thio appellent ce champ une onde composite évanescente diffractée – *Composite Diffracted Evanescent Wave, CDEW* – dont on peut obtenir une expression approchée sous la forme :

$$E_s(x) = \frac{E_i d}{\pi x} \sin(kx) = -\frac{E_i d}{\pi x} \cos \left( k_0 x + \frac{\pi}{2} \right) \text{ pour } |x| > a/2 \quad (1.31)$$

$E_i$  étant l'amplitude de l'onde plane incidente. Il résulte donc de la superposition des ondes de vecteurs  $k_x$  un champ de surface modulé en amplitude selon  $x$ . La période spatiale de la modulation vaut  $\lambda_0 = 2\pi/k_0$ . Le premier nœud de cette distribution est placé à une distance de  $3\lambda_0/4$  du centre de l'ouverture, indépendamment de  $a$ .<sup>16</sup> L'amplitude de la modulation décroît comme l'inverse de la distance à la source.

Cette forme du champ est par la suite utilisée pour décrire le comportement de réseaux de motifs sub-longueur d'onde et d'éléments plus complexes. Nous reviendrons donc sur ce modèle et sur l'article de H. Lezec et T. Thio. Pour une compréhension plus complète du problème, il faut maintenant tenir compte du caractère métallique de l'écran et donc de son épaisseur. On commence par un métal parfait, puis on considérera le traitement plus réaliste de métal de conductivité finie.

## Écrans métalliques épais – conducteurs parfaits

La diffraction par une fente de largeur  $a$  dans un film métallique parfait d'épaisseur  $e$  est traitée par Y. Takakura [53] pour une onde incidente monochromatique, et par S.V. Kukhlevsky [54] dans le cas d'une impulsion femtoseconde incidente. Dans ce dernier article, les auteurs donnent une description théorique du problème en s'appuyant sur la formulation de Neerhoff et Mur des équations de Maxwell [55], pour une onde plane monochromatique polarisée TM (voir la figure 1.7 pour les définitions des polarisations TE et TM), en incidence normale par rapport à la fente. Le champ magnétique<sup>17</sup> est considéré constant selon  $y$  :

$$\mathbf{H}(x, y, z, t) = U(x, z) \exp(-i\omega t) \mathbf{e}_y$$

<sup>16</sup>Le vecteur d'onde  $k_0$  sera remplacé par un vecteur  $k_s = n_s k_0$  pour décrire des situations expérimentales réelles, voir le chapitre 4.

<sup>17</sup>Dans la plus part des articles théoriques, on considère le champ magnétique, qui n'a pas de discontinuité aux interfaces métal/diélectrique, plutôt que le champ électrique.

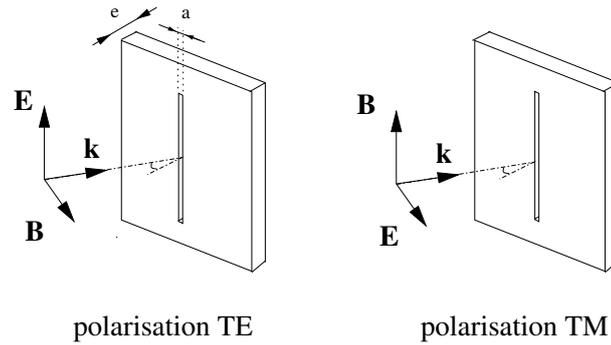


FIG. 1.7: Polarisation TE et TM, la réponse optique de la fente dépend fortement de la polarisation incidente.

Le champ électrique est déduit grâce à l'équation de Maxwell-Faraday (1.3) :

$$E_x(x,z,t) = -\frac{ic}{\omega\varepsilon} \frac{\partial U(x,z)}{\partial z} \exp(-i\omega t) \quad (1.32)$$

$$E_y = 0 \quad (1.33)$$

$$E_z(x,z,t) = \frac{ic}{\omega\varepsilon} \frac{\partial U(x,z)}{\partial x} \exp(-i\omega t) \quad (1.34)$$

Dans ce cadre, le problème se réduit comme précédemment au calcul du champ scalaire  $U(x,z)$ , qui vérifie l'équation de Helmholtz (1.25) dans les régions 1, 2 et 3. Le théorème de Green à deux dimensions est ensuite appliqué dans chaque région :

$$U(x,z) = \int (G\partial_n U - U\partial_n G) dS \quad (1.35)$$

où  $G$  est la fonction de Green de la région considérée et  $\partial_n$  la dérivée partielle par rapport à la normale à l'élément de surface  $dS$ . On utilise ensuite les conditions aux limites du problème pour écrire la fonction de Green dans chaque région. Les auteurs obtiennent un système d'équations intégrales résolues numériquement. Soulignons que le calcul se fait ici dans l'espace réel, contrairement à l'approche précédente qui privilégiait l'espace réciproque.

A l'intérieur de la fente, la fonction de Green est décomposée en une somme discrète : les conditions aux limites imposent un traitement *modal* du champ dans la fente. Nous allons maintenant décrire les différents types de modes permis dans la fente. Une fente diélectrique entourée par des parois métalliques peut en effet être assimilée à un guide d'onde, et les expressions du champ dans la fente s'appuient sur cette théorie. On peut distinguer trois familles de modes dans la fente : les modes propagatifs, les modes de cavité, et les modes totalement évanescents.

### Modes guidés propagatifs

Pour une fente infinie dans une direction, la situation est très différente selon la polarisation de la lumière incidente (voir la figure 1.7) :

- Champ magnétique parallèle à la fente (polarisation TM) : Il existe un mode guidé propagatif quelle que soit la largeur de la fente. Si  $a \leq \lambda/2n_2$ , ce mode est unique [39].

- Champ électrique parallèle à la fente (polarisation TE) : Il n'existe pas de mode guidé propagatif pour  $a < \lambda/2n_2$ . Le champ à l'intérieur de la fente est alors évanescent selon  $\mathbf{e}_z$

Dans le cas où un mode propagatif existe, il peut prendre la forme particulière d'un mode de cavité.

### Modes de cavités

Les études portant sur la diffraction par une fente seule éclairée en polarisation TM [53, 54, 56, 57, 58], soulignent l'apparition en fonction de l'épaisseur  $e$  de résonances de type Fabry-Pérot. On peut comprendre intuitivement l'apparition de tels phénomènes si on attribue un indice effectif  $n_2$  au milieu à l'intérieur de la fente. On pourra dans ce cas avoir des réflexions à l'entrée et à la sortie de la fente. Dans l'article de Y. Takakura, le champ  $H_{y2}(x,z)$  à l'intérieur de la fente est décomposé en une somme de modes :

$$H_{y2}(x,z) = \sum_{n \geq 0} \cos\left(\frac{n\pi x}{e}\right) \left\{ \alpha_n \exp\left[i\sqrt{k_0^2 - \left(\frac{n\pi}{e}\right)^2} z\right] + \beta_n \exp\left[-i\sqrt{k_0^2 - \left(\frac{n\pi}{e}\right)^2} z\right] \right\} \quad (1.36)$$

Une décomposition similaire, mais pour la fonction de Green à l'intérieur de la fente est donnée dans [54], comme nous l'indiquons ci-dessus.

En ne conservant que le premier terme de la décomposition (1.36), Y. Takakura donne une expression analytique du coefficient de transmission  $\tau_{13}$  de la fente :

$$\tau_{13} = e^{-i\frac{\pi}{2}} \frac{2/\lambda}{4(a/\lambda) \cos(k_0 e) [\ln(k_0 a/2) - 3/2] - \sin(k_0 e)} \quad (1.37)$$

Des résonances de type Fabry-Pérot apparaissent quand l'épaisseur du film est proche d'un multiple de  $\lambda/2n_2$ . Une représentation de  $|\tau_{13}|^2$  est donnée sur la figure 1.8.

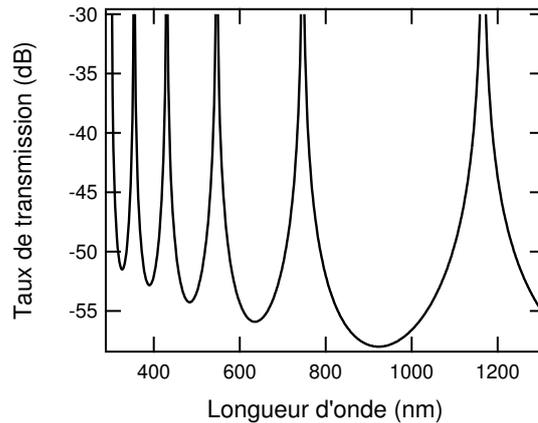


FIG. 1.8: Taux de transmission en fonction de la longueur d'onde à travers une fente dans un film métallique d'après l'équation (1.37), avec  $a = 150$  nm et  $e = 1000$  nm

La longueur d'onde de résonance est décalée par rapport à la condition stricte de Fabry-Pérot à cause de la dépendance en  $\lambda$  du dénominateur de (1.37), c'est-à-dire de l'indice effectif dans

la fente. Ces prédictions ont reçu une confirmation expérimentale dans le domaine micro-onde par F. Yang et J. Sambles [59].

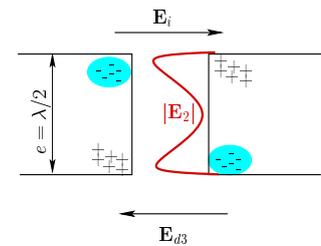
Cet effet Fabry-Pérot est donc le premier facteur que nous rencontrons pouvant expliquer la “transmission extraordinaire” par des ouvertures sub-longueur d’onde. Mais pour obtenir des données quantitatives pour ce taux de transmission, il faut étudier un métal réel.

## Métal réel

Dans ce cas, il devient nécessaire de recourir à des méthodes de résolution numérique des équations de Maxwell (une revue des différentes méthodes numériques est donnée par C. Girard [28]).

Dans leur étude, J. Linberg *et al.* [56] s’appuient sur une résolution de l’équation de Helmholtz en calculant numériquement l’intégrale (1.35) avec un modèle réaliste du métal (indice de réfraction dépendant de la longueur d’onde et conductivité finie). Cette méthode est appelée *rigorous boundary integral method*. On retrouve ici les résonances de cavité. L’étude en fonction de la largeur  $a$  de la fente montre que la finesse de la cavité augmente et que la résonance est décalée vers le rouge quand  $a$  diminue. En effet, plus la largeur est faible, plus la contribution des “ailes” évanescentes du champ pénétrant dans le métal est importante et plus l’indice de réfraction effectif à l’intérieur de la fente est élevé, ce qui augmente le chemin optique dans la fente et le taux de réflexion à ses entrées. Par exemple, pour une ouverture d’une largeur de 50 nm dans un film d’or d’épaisseur de 200 nm, le taux de transmission est maximal autour de 900 nm, ou il vaut environ 2, la puissance transmise est alors supérieure au produit de l’intensité incidente et de la surface de l’ouverture. Pour une fente de 15 nm, le taux de transmission maximal est supérieur à 7, vers 1100 nm. Notons qu’en changeant l’indice du milieu 2 (par exemple en le remplissant avec un diélectrique), ces caractéristiques peuvent être modifiées [60].

Des effets similaires sont obtenus avec des simulations par FDTD (Différences finies dans le domaine temporel) par Y. Xie *et al.* [58]. Les auteurs analysent la transmission par la fente en fonction de ces paramètres géométriques (largeur et épaisseur du film), pour une longueur d’onde donnée, dans l’argent. Les résonances de type Fabry-Pérot permettent d’obtenir des taux de transmission supérieurs à 1. Dans ce cas, on observe une forte augmentation de la densité de charge sur les parois de la fente, aux ventres de l’onde stationnaire formée par les réflexions du mode



guidé aux entrées et sorties de la fente. Les auteurs insistent sur l’importance des porteurs de charge dans l’augmentation du taux de transmission, en tant que médiateurs du couplage entre les deux côtés de l’ouverture. Sur la figure ci-contre, on a schématisé la transmission à travers une fente telle que  $e = \lambda/2$ . Le champ  $E_2$  dans la fente forme une onde stationnaire et des dipôles induits se forment aux entrées et sorties de la fente dans l’épaisseur de peau du métal.

Comme dans l’étude de S. H. Chang *et al.* [60], cette augmentation de la transmission est plus importante pour les largeurs de fente très petites devant la longueur d’onde. Cependant, cette augmentation ne compense pas la diminution de la largeur de la fente, l’énergie totale transmise diminue donc globalement avec la largeur de la fente. Dans cet article, les auteurs étudient en outre l’influence respective des composantes réelles et imaginaires de la fonction diélectrique du métal, en étudiant la transmission d’une fente dans des métaux “fictifs” dont la

constante diélectrique est modifiée. On observe par ce biais que la diminution moyenne du taux de transmission en fonction de l'épaisseur de la fente est due à l'absorption dans le métal, qui augmente en augmentant  $\varepsilon''_m$ .

Nous nous sommes surtout intéressés jusqu'ici aux champs homogènes dans les milieux 1 et 3, et aux modes permis dans la fente. Mais le champ évanescents à la surface joue aussi un rôle prépondérant dans de nombreuses situations.

### Champ de surface pour un métal réel

Dans le cas d'une ouverture dans un écran opaque, H. Lezec a montré que le champ évanescents à la surface pouvait être décrit comme une superposition de modes évanescents [37]. Qu'en est-il d'une surface métallique dont on sait qu'elle peut supporter un plasmon polariton de surface ?

Comme on l'a dit plus haut, les ouvertures sub-longueur d'onde doivent en effet être de bonnes sources de plasmon polariton de surface, dans la mesure où le spectre des champs associés est large dans l'espace réciproque. Ph. Lalanne et ses collaborateurs ont récemment traité plus spécifiquement cet aspect de la diffraction par une fente dans un écran métallique [61].

Les auteurs examinent l'interface entre un métal réel et un diélectrique, ces milieux étant semi-infinis selon  $z$ . Une fente est percée dans le métal. Deux situations sont envisagées : la source de lumière est le mode fondamental de la fente puis la source est une onde plane incidente dans le milieu diélectrique<sup>18</sup>.

Dans le premier cas, les coefficients de la décomposition du champ sur la base des modes propres de l'ouverture, et sur la base des ondes planes dans le milieu diélectrique sont d'abord obtenus par des méthodes numériques. Pour comprendre la nature physique des champs obtenus, le champ transverse est décomposé en une combinaison de modes guidés transverses et de modes homogènes, pour pouvoir extraire les contributions respectives de ces deux champs :

$$\begin{aligned} H_y &= [\alpha^+(x) + \alpha^-(x)] H_s(z) + \sum_i a_i H_1^i(z) \\ E_z &= [\alpha^+(x) + \alpha^-(x)] E_s(z) + \sum_i a_i E_1^i(z) \end{aligned} \quad (1.38)$$

Dans les équations (1.38), la somme porte sur les modes radiatifs dans le diélectrique (milieu 1), et le couple  $\{E_s, H_s\}$  sont les champs transverses d'un plasmon polariton de surface tels que calculés précédemment (§1.1.1). Une condition d'orthogonalité permet d'obtenir deux équations intégrales à partir de ces équations. La résolution (numérique) de ces intégrales permet de calculer les coefficients  $\alpha^+$  et  $\alpha^-$ , correspondant aux amplitudes des plasmons polaritons de surface se propageant vers la gauche et vers la droite de l'ouverture, respectivement. L'efficacité de couplage entre le champ incident est alors définie comme  $\eta^2 = |\alpha^-(-a/2)|^2 + |\alpha^+(a/2)|^2$ . Dans le cas d'une largeur  $a \simeq 0,23\lambda$ ,  $\eta^2 \simeq 40\%$ . Dans certaines conditions, une ouverture sub-longueur d'onde apparaît donc comme une très bonne source de plasmons polaritons de surface. Les auteurs comparent ensuite ces prévisions théoriques à des données expérimentales sur un doublet de fentes sub-longueur d'onde, et montrent un bon accord avec les mesures. Nous reviendrons plus loin (§1.3.2) sur cette expérience.

<sup>18</sup>Le traitement des deux cas est très similaire et nous ne rendons compte que du dernier.

La plupart des résultats présentés jusqu'ici ont été obtenus avec une onde plane incidente en polarisation TM. C'est dans ce cas que l'on obtient une transmission non négligeable, puisqu'il n'y a pas de largeur de coupure (*cut off*) pour le mode guidé dans la fente. Mais on peut aussi s'intéresser au cas complémentaire, où le champ électrique incident est parallèle à la fente, la polarisation TE.

## Polarisation TE

H.F. Schouten *et al.* [62] étudient le cas d'une onde incidente polarisée TE. L'étude démontre dans ce cas aussi l'existence d'une transmission exaltée – c'est à dire un taux de transmission est supérieur à 1 à certaines longueurs d'onde. Dans le cas d'un film d'argent d'épaisseur  $e = 100$  nm, on voit une exaltation du taux de transmission pour  $a = 250$  nm avec  $\lambda = 500$  nm. La fente dans cette géométrie se comportant comme un entonnoir à lumière : les vecteurs de Poynting incidents au voisinage de l'ouverture sont dirigés vers la fente. Le taux de transmission vaut alors 1,33. Cette exaltation est plus importante et a lieu à une longueur d'onde plus basse dans le cas d'un film d'aluminium de conductivité plus faible (c'est à dire pour un métal "moins bon"). Une description de la transmission d'une fente en polarisation TE est aussi donnée par Y. Xie *et al.* [58]. Les auteurs montrent que pour des largeurs inférieures à  $\lambda/2$ , le champ dans la fente est évanescent, la transmission décroît rapidement avec l'épaisseur  $e$  du film, comme cela a déjà été souligné dans le cas d'un métal parfait.

Ainsi, dans le cas d'une fente sub-longueur d'onde, de nombreuses situations présentent une transmission exaltée ou supprimée, c'est-à-dire une puissance transmise plus importante que l'éclairement incident multiplié par la surface de l'ouverture. Après ce survol de la géométrie quasi unidimensionnelle, le cas à deux dimensions le plus simple est celui du trou de section circulaire.

### 1.1.3 Transmission par un trou de section circulaire

La transmission de la lumière par un trou de taille sub-longueur d'onde a d'abord été étudiée par Bethe [63] puis améliorée par Bouwkamp [51]. Le taux de transmission d'un trou de largeur  $a$  varie comme  $(a/\lambda)^4$ , dans la limite des trous très sub-longueur d'onde. F.J. García de Abajo a beaucoup plus récemment réalisé une étude numérique de ce phénomène [64]. On retrouve le comportement prévu par Bethe et Bouwkamp pour des ratios  $a/\lambda < 0,2$ . Pour des trous plus grands, avec des tailles de l'ordre de la longueur d'onde, on obtient ici encore une transmission exaltée, avec un maximum peu prononcé autour de  $a = 0,27\lambda$ . L'auteur attribue cette résonance à l'excitation d'un mode de guide d'onde à l'intérieur du cylindre. Notons que cette étude est réalisée pour des films très peu épais, avec  $e/a \simeq 0,1$ . Dans le cas  $e/a = 0,8$ , le pic de transmission a presque disparu.

Ici comme pour une fente, la conductivité finie d'un métal réel abaisse fortement le diamètre de coupure des modes guidés dans un trou, du fait de la pénétration du champ à l'intérieur du métal. En dessous de ce diamètre, on a un champ évanescent monomode, qui s'atténue plus lentement pour un métal réel que pour un métal parfait à diamètre de trou égal.

## Champ de surface

Dans [65], E. Popov *et al.* donnent les représentations graphiques obtenues par simulation numérique du champ électrique dans le plan  $(x,y)$  immédiatement après l'interface 2/3 dans le cas d'un trou très sub-longueur d'onde ( $e/\lambda \simeq 0,1$ ) éclairé par une onde polarisée linéairement selon  $x$ .

Le champ de surface est assimilé à un plasmon polariton de surface dont la dépendance selon  $x$  s'écrit :

$$E_{sx} = \frac{\alpha_x}{\sqrt{x}} \exp(ik_0 n'_{sp} x + i\phi_x) \exp(-k_0 n''_{sp} x) \quad (1.39)$$

$$E_{sz} = \frac{\alpha_z}{\sqrt{x}} \exp(ik_0 n'_{sp} x + i\phi_z) \exp(-k_0 n''_{sp} x) \quad (1.40)$$

Dans le cas d'un film suffisamment fin pour qu'un champ évanescent non-négligeable soit directement transmis à travers le film, c'est à dire dont l'épaisseur est proche de la portée du champ de surface (de l'ordre de 10 nm), on observe des interférences entre ce champ directement transmis et le plasmon polariton de surface. Notons que la période spatiale de modulation de ces interférences est notablement modifiée en fonction de l'épaisseur du film, c'est-à-dire en fonction de *l'importance du couplage* entre les deux interfaces. On peut comparer cet effet au décalage des niveaux d'énergie moléculaire par rapport aux niveaux atomiques dans une liaison chimique.

Après cette géométrie à deux dimensions mais fortement symétrique, un nouveau pas vers plus de généralité peut être fait en considérant une ouverture elliptique.

### 1.1.4 Transmission par un trou de section elliptique

Cette géométrie permet à A.R. Zakharian et ses collaborateurs de mettre en évidence l'interaction du champ électromagnétique incident avec les charges présentes à l'interface métal/diélectrique et au voisinage de l'ouverture [45]. Ce point de vue, où le rôle des électrons est explicité, permet de comprendre la particularité des films métalliques, alors que le rôle de la densité de charge est généralement "caché" dans l'expression de la fonction diélectrique.

Une onde plane incidente induit un courant de surface dans l'épaisseur de peau de l'écran métallique. Au niveau de l'ouverture, les lignes de courant sont interrompues, ce qui conduit à une accumulation de charges (négatives d'un côté et positives de l'autre). Le dipôle ainsi créé oscille à la fréquence du champ. La transmission de la lumière sera efficace si ce dipôle est important et s'il peut être couplé à un dipôle équivalent sur la face de sortie, qui pourra rayonner dans le demi-espace 3. Le dipôle et donc le taux de transmission sont plus importants dans le cas d'une polarisation perpendiculaire au grand axe de l'ellipse (soit à la limite d'une ellipse très allongée, la polarisation TM). Parallèlement à ce traitement qualitatif des mécanismes de transmission de la lumière par l'ouverture, les auteurs réalisent des simulations par Différences Finies dans le Domaine Temporel (FDTD), dont les résultats viennent appuyer leur interprétation.

### 1.1.5 Conclusion

Les études présentées permettent de relever trois points importants :

- Un motif sub-longueur d’onde correspond à un spectre étendu dans l’espace réciproque et sera donc une source de champ évanescent, qui pourra être couplé à un plasmon polariton de surface.
- Dans une fente, on peut distinguer trois types de mode du champ électromagnétique : Des modes guidés propagatifs et évanescents et des modes de cavité, selon la géométrie et la longueur d’onde considérée. Les modes de cavités résonnants conduisent à une transmission exaltée.
- Un champ électromagnétique incident sur une ouverture induit un dipôle électrique sur les parois de l’ouverture, qui sert de médiateur à la transmission de la lumière par le trou.

Notons qu’une étude numérique très complète de ces différents modes de transmission dans les fentes et les trous est donnée dans l’article de E. Popov [66].

Ainsi, on a vu que différentes méthodes, analytiques avec des approximations importantes, ou numériques, permettaient de décrire le comportement de la lumière lorsqu’elle est diffractée par une ouverture sub-longueur d’onde dans un film métallique. Qu’arrive-t’il si l’on observe maintenant un ensemble d’ouvertures ? De même que les approximations usuelles ne sont pas valides pour traiter une seule ouverture sub-longueur d’onde, si la distance entre ces ouvertures est proche de la longueur d’onde, une analyse prudente devient nécessaire. C’est ce qui est apparu à la suite des premières expériences de T.W. Ebbesen sur la transmission par un réseau de trous sub-longueur d’onde [29], et ce à quoi nous allons nous intéresser maintenant.

## 1.2 Transmission par des motifs périodiques

L’article de T.W.Ebbesen *et al.* qui a relancé l’étude de la transmission de la lumière par des ouvertures sub-longueur d’onde [29] portait sur un réseau de trou, présentant une transmission exaltée pour des longueurs d’onde supérieures à la période du réseau. Ce type de comportement sera retrouvé par la suite dans une grande variété de réseaux, dans des films métalliques pour des motifs différents, aussi bien expérimentalement que numériquement : trous circulaires [60, 67, 68, 69, 44, 70], réseau de fentes [71, 72, 73], mais aussi des films minces optiquement fins [74, 75] pour certains ondulés et dépourvus de trous [76], et des films non métalliques – tungstène ou silicium amorphe<sup>19</sup> [37]. Les spectres de transmission de ces films métalliques donnent tous un taux de transmission exalté ou supprimé pour des longueurs d’ondes proches de la période du réseau. Un exemple de spectre de transmission est donné dans la figure 1.9.

Nous verrons dans ce sous-chapitre les différentes explications données à cette réponse spectrale.

### 1.2.1 Définitions

Les définitions sont essentiellement les mêmes que pour un motif unique.

Le taux de transmission est défini comme le rapport de l’intensité diffractée dans l’ordre 0 et de l’intensité incidente<sup>20</sup>. D’autre part, on appelle  $\mathbf{g}$  le vecteur unitaire du réseau réciproque,  $|\mathbf{g}| = 2\pi/d$  dans le plan (x,y).

<sup>19</sup>Dans ce cas la transmission est modulé en fonction de la longueur d’onde mais reste inférieure à 1.

<sup>20</sup>Dans le cas où  $d < \lambda$ , seul l’ordre 0 est propagatif.

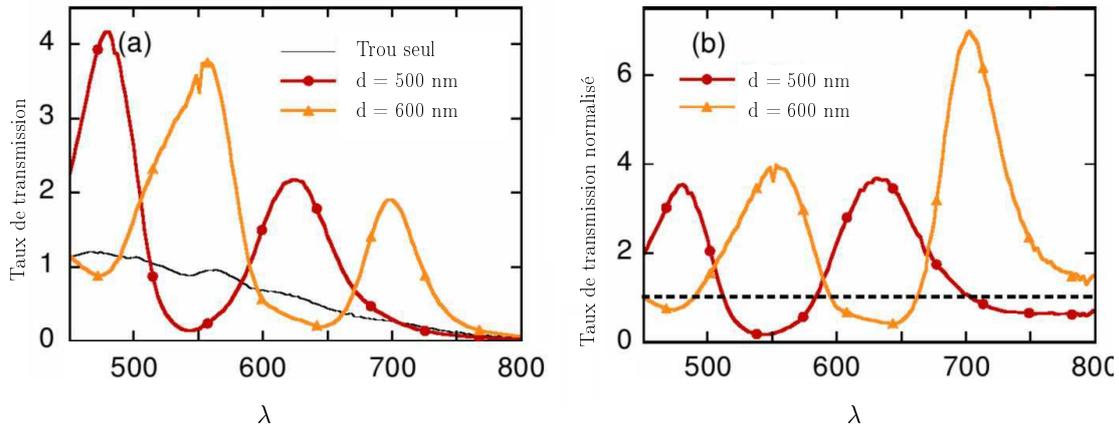


FIG. 1.9: Spectres de transmission d'un trou unique et de réseaux de  $9 \times 9$  trous ( $e = 340$  nm,  $a = 250$  nm,  $d = 500$  nm et  $600$  nm). Le taux de transmission est normalisé par rapport à la fraction ouverte du réseau (a) et par rapport au taux de transmission d'un trou unique (b), spectres tirés de l'article de H. Lezec et T. Thio [37]

## 1.2.2 Premiers modèles

### Anomalies de Wood

Les premières observations d'un comportement anormal avec des réseaux remontent aux expériences de R.W. Wood sur la diffraction de lumière blanche par des réseaux métalliques en réflexion, au début du siècle dernier [77]. L'auteur a montré que le spectre de l'ordre 3 de la réflexion d'une source polarisée TM par un réseau métallique <sup>21</sup> possède des bandes brillantes et sombres spectralement étroites dont la théorie classique ne rendait pas compte. Lord Rayleigh a le premier expliqué ces anomalies en constatant qu'elles apparaissaient pour les longueurs d'ondes dont un ordre de diffraction était tangent à la surface. De même, à une longueur d'onde donnée, lorsque l'angle d'incidence est tel qu'un ordre de diffraction soit parallèle à la surface, on peut obtenir un effet de *diffraction secondaire*, c'est à dire que le faisceau diffracté interagit à son tour avec les traits du réseau. Cet effet est d'origine purement optique et est décrit par ce que Lord Rayleigh appela la diffraction dynamique. Mais le modèle de Lord Rayleigh ne prenait en compte que les ordres de diffraction radiatifs du champ réfléchi par le réseau. Cette approximation ne permettait pas de rendre compte de toutes les caractéristiques observées, notamment la forme de raie précise des résonances, la présence d'anomalies en polarisation TE, ou la disparition de certaines anomalies lorsqu'on diminue la profondeur des traits du réseau. Les anomalies associées à l'émergence d'un nouvel ordre de diffraction en polarisation seront par la suite appelées anomalies de Wood-Rayleigh. Ce phénomène bien connu n'explique donc pas complètement le spectre observé pour des réseaux sub-longueur d'onde.

<sup>21</sup>l'étude porte sur un réseau de 15000 traits par pouces, avec un rapport cyclique de 1 :8, soit une période de  $1,6 \mu\text{m}$  pour des traits de  $200$  nm de large.

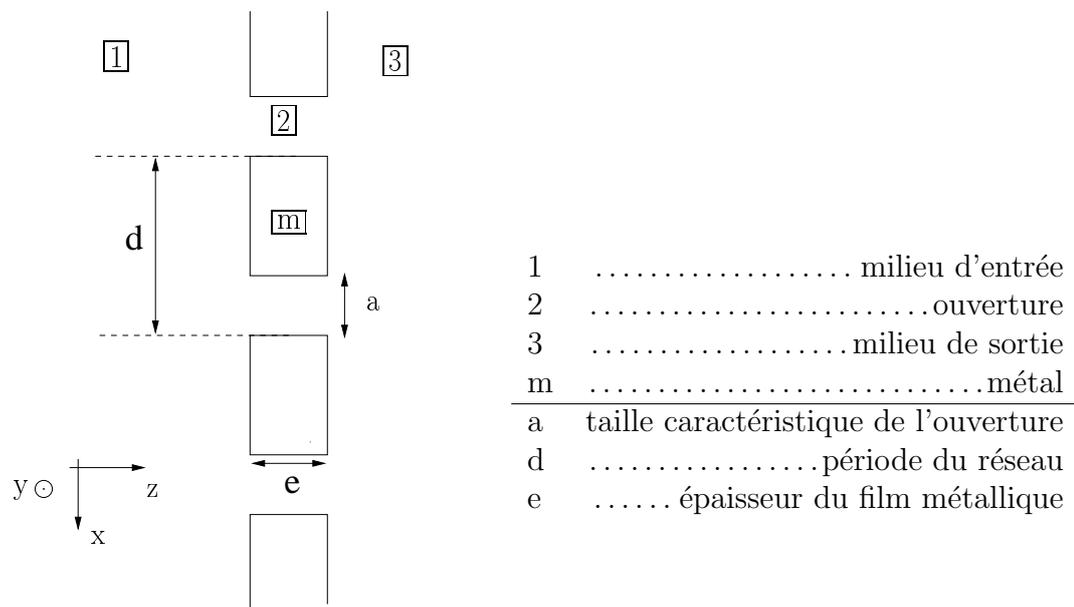


FIG. 1.10: Réseau d'ouvertures sub-longueur d'onde

### Modèles plasmoniques

Les premiers modèles proposés à la suite des expériences de T.W. Ebbesen *et al.*, pour des fentes [38, 39] et pour des trous [40], mettent l'accent sur les plasmons polaritons de surface pour expliquer le phénomène de transmission extraordinaire<sup>22</sup> : la présence d'un réseau à la surface modifie la relation de dispersion du plasmon polariton de surface. On obtient naturellement un diagramme de bande en “repliant” cette relation dans chaque zone de Brillouin ( $n.g < k_x < (n+1)g$  – voir la figure 1.11).

Aux limites de chaque zone Brillouin, on trouve une bande interdite. Cette bande résulte du couplage entre les champs diffractés par chaque trou, qui “communiquent” par l'intermédiaire des courants de surfaces. La courbe de dispersion est alors stationnaire sur chacune des bandes, et on peut avoir une excitation résonante de cette onde de Bloch. Remarquons que, contrairement à un plasmon polariton de surface pour un plan lisse, ces ondes de Bloch peuvent être excitées par une onde plane incidente, en absorbant un vecteur du réseau  $\mathbf{g}$ , un vecteur d'onde homogène peut être couplé au mode plasmon polariton à droite de la ligne de lumière.

Dans le cas du réseau de trous, l'exaltation du taux de transmission est due, selon J. A. Porto *et al.* [38], au couplage résonnant du champ incident à un mode plasmon polariton de surface aux deux interfaces du réseau métal/diélectrique.

Selon Ph. Lalanne [39], deux phénomènes expliquent la forme du spectre de transmission d'un réseau de fentes :

- le couplage du champ incident à un mode guidé dans la fente,
- et les couplages à un plasmon polariton de surface des champs incident et transmis par la fente.

L'efficacité de chacun de ces couplages dépend de la longueur d'onde incidente. Leur effet

<sup>22</sup>distinct des anomalies de Wood-Rayleigh.

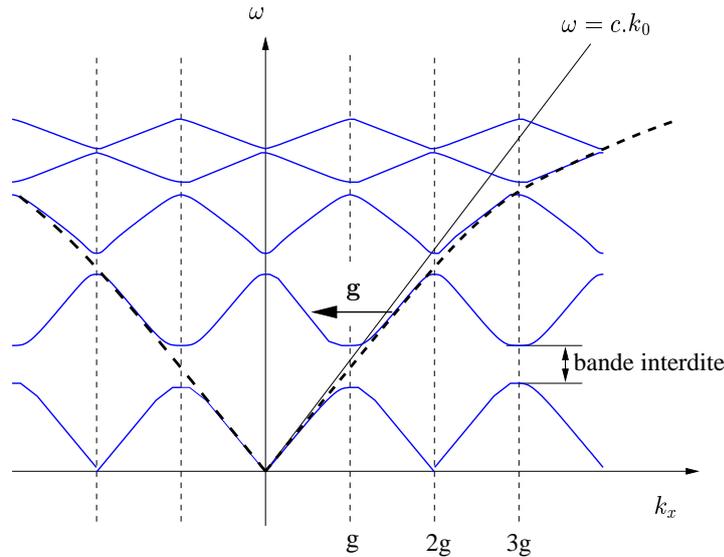


FIG. 1.11: Modification de la relation de dispersion du plasmon polariton de surface en présence d'une modulation périodique de la surface, d'après [49]. La courbe en pointillés donne la relation de dispersion en l'absence de réseau (voir la figure 1.2).

conjugué reproduit la signature spectrale mesurée expérimentalement.

L'étude numérique de I.R. Cooper et J.R. Sambles [76] sur un film très mince non percé mais simplement périodiquement déformé vient appuyer le rôle des plasmons polaritons de surface dans la transmission de la lumière : le couplage évanescent des modes de surface à chaque interface est en effet le seul mécanisme de transmission de la lumière à travers le film. Ce transfert est cependant non-négligeable uniquement dans le cas où le film est assez mince pour que l'intégrale de recouvrement des deux champs évanescents soit assez grande, c'est à dire que l'épaisseur du film ne soit pas trop grande devant la profondeur de pénétration de ces champs dans le métal (soit quelques dizaines de nanomètres).

Il apparaît cependant que les plasmons polaritons de surface ne sont pas les seuls modes responsables de la transmission exaltée de la lumière : on retrouve en effet des phénomènes d'exaltation dans des géométries où ces ondes de surface n'existent pas. C'est le cas par exemple des réseaux de fentes éclairées en polarisation TE étudiés numériquement par l'équipe de L. Martín-Moreno et F.J. García-Vidal dans [78], ou simplement dans les nombreuses études portant sur un métal parfait. Les études plus récentes parlent donc de "pseudo plasmons" (*spoof plasmons*) [79]. La modulation de la surface du métal conduit à une décomposition du champ en modes de surface reproduisant le comportement des plasmons polaritons. Il ne faut donc pas confondre *le* plasmon polariton de surface associé à une interface *plane* pour une longueur d'onde donnée, et *les* plasmons polaritons de surface associés à un réseau. Ce terme est désormais largement employé pour désigner tout champ évanescent à une interface métal/diélectrique. L'approche proposée ici s'inspire des méthodes et du vocabulaire de la physique du solide (excitons et ondes de Bloch). Mais une autre description, héritière de la théorie des réseaux en optique, a aussi été proposée.

## Modèles diffractifs

M.M.J. Treacy constate dans ses articles [41, 42] que le problème de diffraction de rayons X par des cristaux est formellement identique à la diffusion de lumière visible par un réseau de trous sub-longueur d'onde. Le formalisme développé repose sur la diffraction dynamique : le champ est décomposé en modes d'ondes de Bloch. Les conditions aux bornes imposées par la géométrie permettent de calculer les valeurs propres du champ dans la base des modes d'onde de Bloch. Le champ produit dans la région 3 résulte des interférences entre tous ces modes, ce qui justifie le terme de "diffraction dynamique" : un nombre élevé de ces modes ont une contribution non négligeable et jusqu'à cent termes sont nécessaires pour reproduire le comportement expérimental. Le lien est fait avec les modèles décrits plus haut en assimilant les modes confinés aux interfaces aux plasmons polaritons de surface et les modes localisés dans les fentes aux modes guidés mis en exergue par Ph. Lalanne [39].

L'approche de H. Lezec [37] est similaire : chaque trou est la source d'un champ homogène et d'une onde composite (CDEW), qui peut être elle-même re-convertie en onde radiative par un autre trou. La somme des contributions des modes propagatifs et des modes évanescents obtenus par diffraction de l'onde de surface produisant des interférences constructives aux longueurs d'onde résonantes.

L'article de F. J. García de Abajo *et al.* [67] appuie cette interprétation en montrant qu'une transmission totale est permise pour un réseau de trous arbitrairement étroits dans un métal parfait. Ils démontrent numériquement la validité du principe de Babinet qui stipule que le taux de transmission d'un motif est égal aux taux de réflexion de son complémentaire. En effet, le taux de transmission d'un réseau de trous est égal au taux de réflexion de sa structure complémentaire, c'est-à-dire un réseau de disques cylindriques, du moins dans le cas d'un métal parfait. Ceci est d'ailleurs démontré expérimentalement (résultats non publiés de H. Lezec). On l'a vu, ces modèles diffractifs n'assignent pas de rôle prépondérant aux plasmons polaritons de surface, qui sont traités comme des modes propres du réseau parmi d'autres. En fait, une transmission extraordinaire – aussi bien fortement augmentée que complètement annulée – peut avoir lieu dans toute situation où la longueur d'onde de la lumière incidente s'accorde avec l'un des paramètres géométriques du réseau, chaque géométrie demandant un traitement spécifique pour déterminer l'origine de la résonance.

### 1.2.3 Profils de Fano

#### Anomalies de Wood résonantes

En 2003, M. Sarrazin *et al.* [43] ont rappelé les travaux effectués par A. Hessel et A. A. Oliner en 1965 [80], et complété par D. Maystre, M. Nevière et P. Vincent [81, 82] en 1977.

Dans ces articles, les auteurs prennent en compte dans leur modèle l'existence à l'interface d'ordres de diffraction non propagatifs (évanescents), c'est à dire possédant un vecteur d'onde complexe, contrairement au modèle donné par Lord Rayleigh. D'autre part, en assignant à l'interface une impédance complexe décomposée en série de Fourier à la période du réseau, A. Hessel et A. A. Oliner font apparaître des modes guidés à l'interface et des modes de cavité dans les sillons du réseau, aussi appelé *leaky waves*<sup>23</sup>. Ce traitement permet aux auteurs non seulement

<sup>23</sup>Nous ne nous risquons pas à une traduction en français

de retrouver les anomalies de Wood-Rayleigh, mais aussi d'observer un autre type d'anomalies, associées à une *résonance* entre les ordres de diffraction évanescents et les modes guidés à l'interface. Une différence importante entre les anomalies de Wood-Rayleigh et les anomalies de résonance apparaît lors du *croisement* de deux anomalies en fonction de l'angle d'incidence sur le réseau. En modifiant cet angle, on peut en effet déplacer la position spectrale des anomalies (schématiquement, on change la période effective du réseau). Les anomalies associées à des ordres de diffraction positifs et négatifs se déplaceront en sens inverse, jusqu'à éventuellement se croiser. Pour les anomalies de Wood-Rayleigh, on observe simplement une intersection entre les deux positions. Pour une anomalie de résonance par contre, on observe un croisement évité : les deux courbes se "repoussent" avant d'échanger leur rôle, et une bande interdite apparaît (voir la figure 1.12), comme ce que l'on peut observer dans un réseau d'ouvertures (sur la figure 1.11).

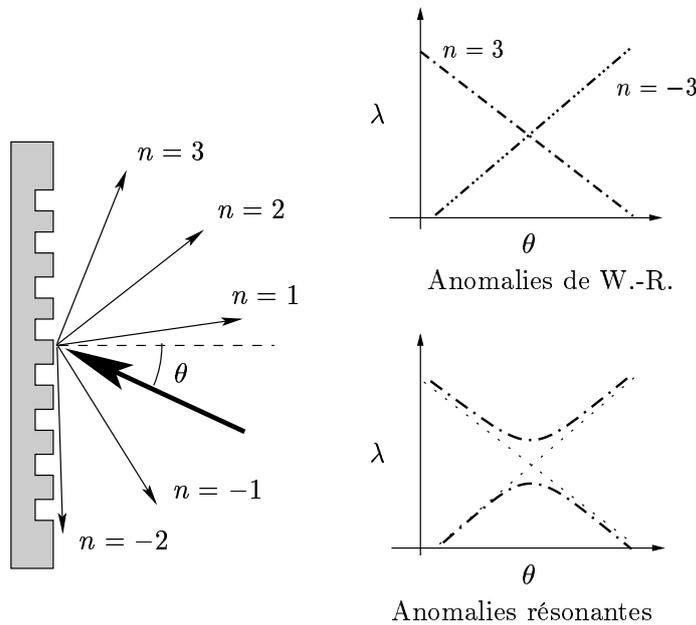


FIG. 1.12: Positions spectrales des anomalies de Wood-Rayleigh et des anomalies de Wood résonantes en fonction de l'angle  $\theta$  du faisceau incident sur le réseau.

### Analogies avec la mécanique quantique

En s'appuyant sur l'analyse précédente, M. Sarrazin *et al.* [43] et conjointement C. Genet *et al.* [44] ont proposé une analyse synthétique cherchant à concilier les interprétations plasmonique et diffractive. Ces articles proposent d'interpréter la réponse spectrale d'un réseau sub-longueur d'onde en s'appuyant sur une analogie avec un phénomène bien connu en physique atomique, celui de la diffusion de Fano. Lorsqu'un processus de diffusion *non résonnant* vers un continuum à partir de l'état fondamental  $|f\rangle$  est en compétition avec une transition *résonnante* vers un état lié  $|e\rangle$  d'énergie supérieure couplé au continuum par un potentiel  $\hat{V}$  (voir figure 1.13). La

force du couplage et la largeur de l'état excité déterminent la forme du profil de l'efficacité de la diffusion en fonction de l'énergie initiale de la particule diffusée.

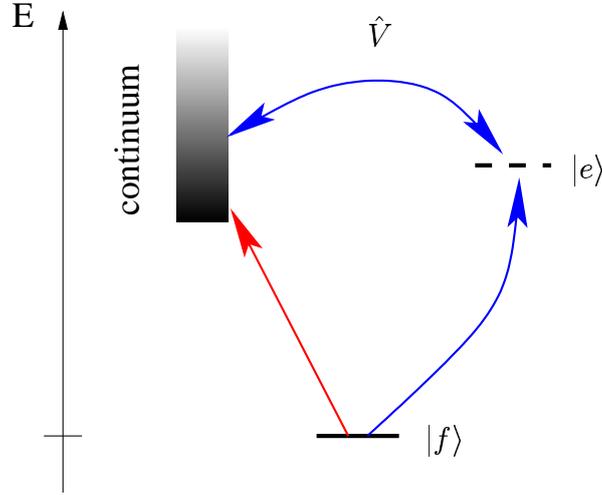


FIG. 1.13: Diffusion de Fano : l'état fondamental  $|f\rangle$  est couplé au continuum et à l'état excité lié  $|e\rangle$  d'énergie supérieure à l'écart entre le continuum et l'état fondamental. L'état  $|f\rangle$  est à son tour couplé au continuum par l'opérateur  $\hat{V}$

On peut établir l'analogie suivante :

Atomique	Optique
Transition $ f\rangle \rightarrow \text{continuum}$	Onde plane incidente $\rightarrow$ Champs transmis et réfléchi
$ f\rangle \rightarrow  e\rangle$	Onde plane incidente $\rightarrow$ Plasmon de surface ou mode de cavité
$\hat{V}$	Couplage du plasmon de surface aux champs homogènes

Dans leur article, C. Genet *et al.* [44] considèrent les modes de surface du réseau de trou seulement sur la face d'entrée (on peut reproduire expérimentalement une telle situation en déposant une couche diélectrique absorbante sur la face de sortie, de manière à prévenir la propagation de champs de surface). La diffraction directe vers la région 3, appelée contribution de Bethe, est non résonante. Le taux de transmission associé  $\tau_{13}^b$  est simplement celui d'un trou unique (voir le paragraphe 1.1.3). Pour poursuivre l'analogie quantique, on associe à cette transition un Hamiltonien  $\hat{H}_1$ . Les états diffractés sont appelés  $\Psi_E$  et sont des états propres de  $\hat{H}_1$ .

Le processus résonnant est associé au couplage du champ incident à un mode discret sur la surface, c'est-à-dire un mode dont le vecteur  $\mathbf{k}$  est accordé à un vecteur du réseau réciproque. Soit encore un mode d'onde de Bloch, ou un plasmon polariton de surface, selon les différentes terminologies. L'hamiltonien associé est noté  $\hat{H}_{sp}$  et ses états propres  $\Psi_{sp}$ . L'hamiltonien total du système s'écrit :

$$\hat{H} = \hat{H}_1 + \hat{H}_{sp} + \hat{V} \quad (1.41)$$

Les fonctions propres de cet hamiltonien sont notées  $\Phi_E$

Le couplage entre le champ diffracté non résonnant  $\Psi_E$  et le mode résonnant  $\Psi_{sp}$  s'écrit :  $\langle \Psi_E | \hat{V} | \Psi_{sp} \rangle = V_E$ . La donnée de ce couplage permet de déterminer une largeur de raie et un désaccord<sup>24</sup> pour cette transition :

$$\begin{aligned}\Gamma_E &= \frac{2\pi}{\hbar} |V_E|^2, \\ \Delta_E &= \frac{1}{2\pi} \mathcal{P} \int dE' \frac{\Gamma_{E'}}{E - E'}.\end{aligned}$$

Les auteurs en déduisent l'expression du taux de transmission  $T$  en fonction de  $E = \hbar\omega$  et de  $\tau_{13}^b$ . Cette forme de raie est appelée profil de Fano.

$$T_{13} = |\tau_{13}|^2 = |\tau_{13}^b|^2 \frac{[E - (E_{sp} + \hbar\Delta) + \hbar\delta]^2}{[E - (E_{sp} + \hbar\Delta)]^2 + [\hbar\Gamma/2]^2} \quad (1.42)$$

La figure 1.14 donne un exemple de profil de Fano.

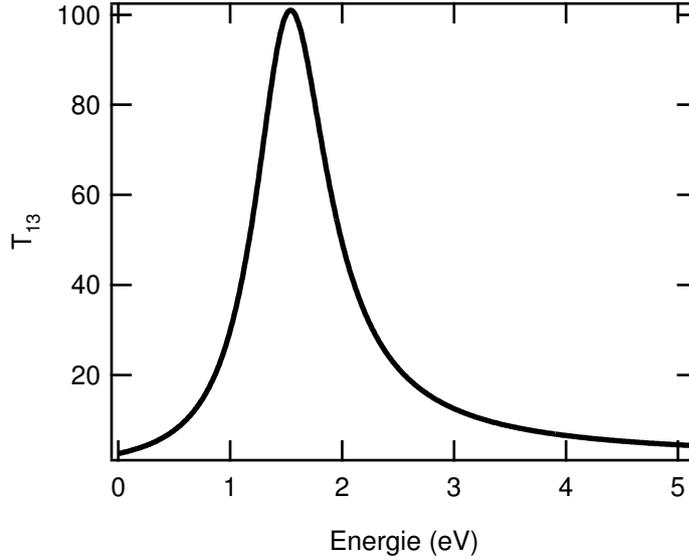


FIG. 1.14: Profil de Fano. On a pris  $\tau_{13}^b = 1, E_{sp} = 1eV, \hbar\Delta = 0,5E_{sp}, \hbar\delta = 2E_{sp}$  et  $\hbar\Gamma = 0,8E_{sp}$

Les quatre paramètres  $E_{sp}$ ,  $\Gamma$ ,  $\Delta$  et  $\delta$  déterminent la forme de la raie. Ces termes sont reliés aux caractéristiques physiques du système :

- le terme de largeur de raie  $\Gamma$  provient de l'amortissement de l'état discret par perte radiative (couplage au continuum), et par perte non-radiative (absorption dans le métal),
- le terme  $E_{sp}$  correspond à l'énergie  $\hbar\omega_{sp}$ ,
- le décalage  $\Delta$  provient du couplage du mode résonnant au continuum,
- le paramètre  $\delta$  définit enfin le rapport des amplitudes de transition résonnantes et directes.

<sup>24</sup>par rapport à la transition résonnante en l'absence de couplage

La courbe d'équation (1.42) peut ensuite être ajustée à un spectre expérimental en laissant ces quatre paramètres libres. Les auteurs vérifient la cohérence des lois d'échelles données par cette équation.

La validité de cette approche est démontrée dans l'article de S. Chang et S. K. Gray [60]. L'analyse en termes de profils de Fano est étendue au cas de résonances multiples, et un profil de Fano est ajusté à chaque pic d'un spectre obtenu par simulation numérique (analyse par éléments finis dans le domaine temporel).

Avant de conclure, citons très brièvement l'article de F.J. García de Abajo, A.G. Borisov et S.V. Shabanov [83]. L'analogie avec la diffusion en mécanique quantique est ici aussi menée. Les auteurs considèrent une impulsion femtoseconde incidente. Les équations de Maxwell dans des milieux passifs et linéaires sont écrites sous la forme d'une équation de Schrödinger formellement identique au problème de diffusion (scattering) dans le formalisme de Lippman-Schwinger. Les modes résonnants sont ici appelés *modes piégés* et sont quasi-stationnaires, c'est à dire qu'ils ont une grande durée de vie, donc une faible largeur de raie. Ce point de vue permet ainsi de saisir le caractère essentiellement *dynamique* de la transmission extraordinaire par des réseaux sub-longueur d'onde : en quelque sorte, le film métallique accumule du champ, comme c'est le cas d'une cavité optique.

### 1.2.4 Conclusion

Nous avons essayé dans cette section de rendre compte des modèles employés pour analyser les mécanismes en jeu dans la diffraction de la lumière à travers des réseaux sub-longueur d'onde gravés dans des films métalliques. La périodicité du réseau entraîne naturellement une expression du problème de condition aux bords en termes d'accord de mode (*mode matching*) dans l'espace réciproque. La modification de la relation de dispersion par le réseau induit des résonances entre ces modes et les champs propagatifs. Quand les conditions de polarisation et la symétrie le permettent, ces modes sont appelés plasmons polaritons de surface. Notons que ces cas correspondent aux taux de transmission les plus importants [84]. Interprété en termes de diffraction dynamique, chaque élément du réseau est considéré comme une source secondaire, la somme cohérente des contributions de chaque source permettant de construire les champs transmis et diffractés. Nous avons ensuite vu que l'analogie avec la théorie de la diffusion résonante en mécanique quantique permettait d'avoir une vue synthétique des mécanismes de transmission exaltée.

Notons pour résumer que le phénomène de transmission extraordinaire de la lumière est relié à des termes de couplages forts entre les champs radiatifs et des modes évanescents quasi-stationnaires dans le réseau. Ces modes évanescents sont les modes propres des motifs sub-longueurs d'onde que nous avons décrits plus haut, couplés par l'intermédiaire des champs de surface.

Après le motif unique (localisé dans l'espace réel) et le réseau (localisé dans l'espace réciproque), une dernière classe d'éléments peut être étudiée, qui se situent entre ces deux extrêmes.

## 1.3 Ouvertures décorées

Nous avons vu dans les paragraphes précédents que l'intensité totale transmise par des réseaux sub-longueur d'onde était fortement modulée spectralement. Le champ lointain est par contre uniquement composé de l'ordre 0 de diffraction et donc très homogène angulairement. D'autres motifs permettent de moduler la distribution angulaire de l'intensité transmise dans le champ lointain. Nous verrons dans ce chapitre quels sont ces éléments et, ici encore, comment leur comportement est décrit.

Dans un cadre diffractif, chaque ouverture d'un réseau agit comme une source secondaire. C'est vrai plus généralement de toute déformation de la surface. Il suit qu'une ouverture unique entourée de tels défauts – que l'on appellera sillons par la suite – présentera le même genre de phénomènes que ceux déjà observés dans les réseaux. C'est-à-dire que dans ce cas aussi le champ de surface sera fortement couplé au champ propagatif dans les régions 1 et 3.

### 1.3.1 Effet de collimation

En champ lointain, un trou sub-longueur d'onde peut être considéré comme une source ponctuelle, et son diagramme d'émission sera pratiquement isotrope angulairement. L'angle d'émission est simplement donné par  $\sin \theta = k_x/k_0$ . L'interaction avec une structure périodique opaque sur l'interface de sortie permet cependant de diminuer conséquemment la divergence du champ transmis. On parle d'effet de collimation (*beaming effect*). La figure 1.15 montre une image au microscope électronique balayage d'une fente entourée de sillons périodiques produisant cet effet de collimation.

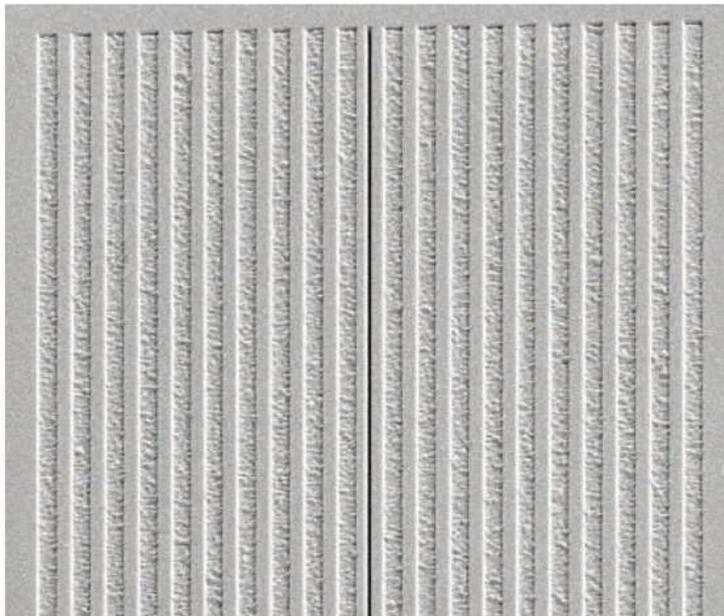


FIG. 1.15: Image au microscope électronique à balayage d'une fente de 150 nm par 50  $\mu\text{m}$  entourée par dix sillons de 415 nm de large espacés périodiquement de 830 nm.

Cet effet a été mis en évidence pour la première fois par l'équipe de T.W. Ebbesen et H. Lezec, puis étudié formellement par L.Martín-Moreno et F. García-Vidal dans le cas d'un métal parfait [36, 85], puis dans le cas d'un métal de conductivité finie [86]. Ce type de phénomène a aussi été démontré dans le domaine THz par H. Cao, A. Agrawal et A. Nahata [87]. Z.-B. Li *et al.* ont montré que des effets similaires pouvaient être obtenus en modulant la surface d'un film diélectrique déposé sur le film métallique [88]. On trouvera des images obtenues par microscopie de champ proche des champs produits par ces structures dans l'article de P.K. Wei *et al.* [89].

Une fente de largeur sub-longueur d'onde entourée de  $N/2$  sillons espacés périodiquement de chaque côté de l'ouverture, éclairée sur sa face non décorée par une onde plane incidente polarisée TM produit un faisceau faiblement divergent (la divergence à mi-hauteur est de l'ordre de  $3^\circ$  pour  $N = 30$ ).

Cette figure d'émission particulière découle de quatre étapes :

- La lumière est transmise par l'ouverture sub-longueur d'onde centrale, en créant à l'interface avec le milieu 3 un champ évanescent.
- Ce champ est couplé aux modes propres du champ dans les motifs voisins
- Ces motifs produisent à leur tour un champ radiatif.
- Le champ total dans le milieu 3 est le résultat des interférences à  $N+1$  ondes homogènes issues des sillons et de la fente.

On peut alors écrire :

$$\mathbf{E}_3 = \mathbf{E}_f + \sum_{j=1}^N \mathbf{E}_j e^{-i\phi_j} \quad \phi_j \text{ est le retard de phase associé au sillon } j \quad (1.43)$$

L'équation (1.43) permet de comprendre le comportement du champ lointain, sans donner les détails des champs proches. Ainsi, l'extension spatiale de la source est proportionnelle au nombre de sillons. En conséquence la divergence observée est inversement proportionnelle au nombre de sillons [90]. L'angle d'émission du premier nœud de diffraction par une ouverture de dimension  $a$  est en effet  $\theta_0 = 2\pi\lambda_0/a$ . Pour obtenir une bonne collimation, c'est-à-dire des interférences constructives sur l'axe optique, toutes les sources doivent être en phase.

Dans la description de H. Lezec [37], cela signifie que les sillons doivent être espacés d'un nombre entier de longueur d'onde de la CDEW, et que le premier doit être décalé d'un quart d'onde par rapport à l'ouverture, d'après l'équation (1.31), de manière à faire correspondre les positions des sillons aux maxima d'intensité du champ de surface. Dans l'interprétation en terme de plasmons, la période des sillons doit être résonante avec un plasmon polariton de surface pour la longueur d'onde employée. Le champ propagatif correspond alors à un mode collectif de l'ensemble des sillons [85]. Hors de la condition de collimation, on peut observer des faisceaux dirigés selon d'autres directions, ou même une annulation de l'intensité transmise. Mais si la forme de la distribution d'intensité dans le champ lointain dépend principalement des positions des sillons, l'efficacité du procédé reste tributaire d'un couplage efficace entre les modes rencontrés, dépendant comme on l'a vu de la géométrie de la fente et des sillons. Remarquons que cet effet de collimation est observé aussi pour des figures à symétrie circulaire, appelées œil de bœuf (*bullseye*) que nous rencontrerons par la suite. La figure 1.16 donne une simulation numérique du champ produit par une telle ouverture.

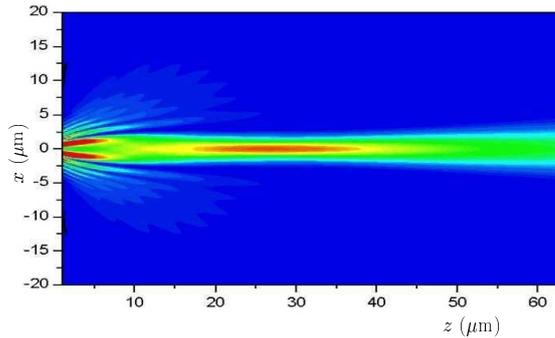


FIG. 1.16: Simulation du champ produit par une ouverture sub-longueur d'onde de 150 nm entourée de 20 sillons espacés de 600 nm et de 300 nm de large. Les sillons font 300 nm de large. Image tirée de [91].

Un effet symétrique est observé si les sillons sont placés face au faisceau d'excitation. Dans ce cas, les sillons sont directement éclairés par le faisceau incidents. La condition d'accord de phase qui produisait un faisceau collimaté en face de sortie se retrouve ici pour permettre un couplage important entre les modes dans les sillons et le champ guidé à travers la fente [36]. Une partie de la lumière incidente à côté du trou est donc redirigée à l'intérieur de celui-ci. On obtient alors une augmentation du champ transmis par l'ouverture.

La combinaison de cet effet de collection à l'effet de collimation précédent permet de réaliser des structures avec un fort taux de transmission et un champ modulé spatialement dans la région 3, comme illustré sur la figure 1.17.

C'est cet effet de collimation et la distribution spatiale d'intensité produite, qui nous ont attirés vers l'étude des ouvertures sub-longueur d'onde. En effet, on imagine aisément que le principe décrit ici puisse se généraliser pour réaliser des distribution d'intensité plus "exotiques", qui permettraient de guider ou piéger des atomes froids. Nous avons donc travaillé sur ces éléments en collaboration avec H. Lezec et T.W. Ebbesen. Nos travaux sont rapportés dans les chapitres 2 et 3, où nous reviendrons en détails sur leurs propriétés.

Cependant, pour pouvoir réaliser des motifs intéressants pour l'optique atomique, il faut avoir une bonne connaissance des différents procédés en jeu et de leurs importances relatives. En particulier, un point central dans les phénomènes observés ici réside dans l'intermédiaire du couplage entre les différents motifs d'une ouverture décorée, c'est-à-dire le champ de surface. Pour étudier cette "interaction", on s'oriente vers des géométries très simples, que nous allons décrire maintenant.

### 1.3.2 Doublets

#### Fentes d'Young

Une forme simple d'élément optique permettant de vérifier le comportement du champ de surface consiste en un doublet de fentes sub-longueur d'onde. Cette expérience a été réalisée par H.F. Schouten *et al.* [92], avec deux fentes de  $200 \text{ nm} \times 50 \mu\text{m}$  espacées de quelques micromètres, gravées sur un film d'or de 200 nm déposé sur un substrat de quartz fondu. Entre la couche d'or et le verre est intercalée une couche d'adhésion de titane de 10 nm.

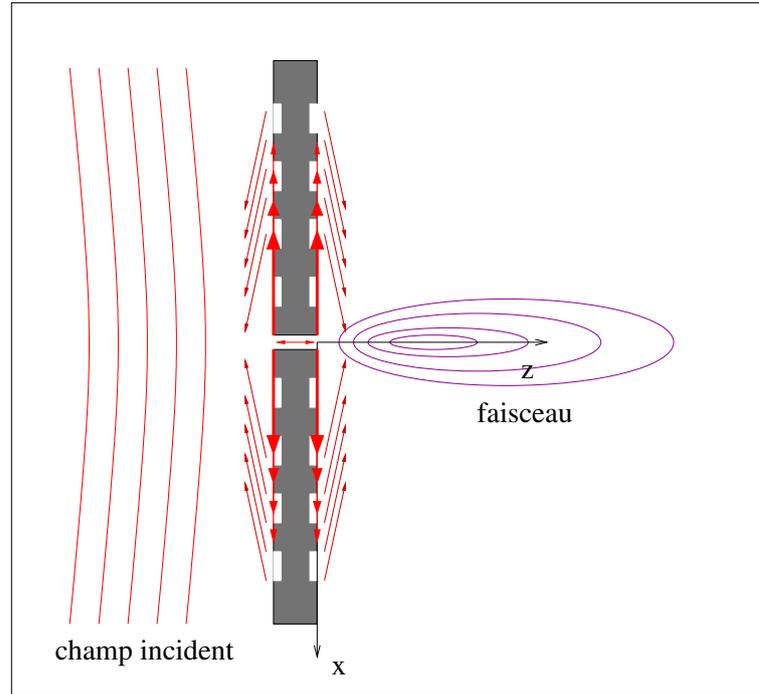


FIG. 1.17: Effet de collection en face d'entrée et de collimation en face de sortie d'une ouverture entourée de sillons espacés périodiquement

Contrairement à la situation classique, on observe une modulation sinusoïdale de l'intensité totale transmise en fonction de la longueur d'onde incidente. Selon les auteurs, cette augmentation est due aux interférences au niveau de chaque ouverture entre le champ homogène et le champ de surface produit par l'autre fente, comme illustré sur la figure 1.18.

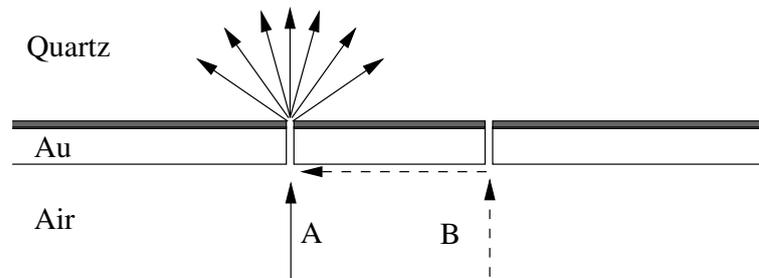


FIG. 1.18: Schéma de l'interférence sur l'une des fentes entre le champ directement transmis et le champ de surface produit par l'autre fente.

La longueur d'atténuation d'un plasmon polariton de surface à l'interface or/air est de l'ordre de  $80 \mu\text{m}$ , mais de seulement  $7 \mu\text{m}$  pour l'interface titane/quartz. On peut donc ne considérer que les champs de surface à l'interface or/air. La puissance totale transmise  $P$  s'écrit alors :

$$P = 2E_1^2(\lambda) [1 + \beta^2(k_{sp}) + 2\beta(k_{sp}) \cos(k_{sp}d + \phi)] \quad (1.44)$$

où  $\beta$  est l'amplitude relative du plasmon polariton de surface et  $E_1$  l'amplitude du champ transmis par une fente unique, et  $d$  la distance entre les fentes. Cette expérience a récemment

été analysée théoriquement par Ph. Lalanne *et al.* dans un article déjà cité [61]. En s'appuyant sur le modèle que nous avons rappelé au § 1.1.2 et de l'équation 1.44 les auteurs reproduisent le comportement sinusoïdal de l'intensité transmise par le doublet.

### Doublets fente-sillon

Des phénomènes comparables auront lieu si on réalise un doublet fente-sillon. Dans ce cas, on pourra observer en champ lointain les interférences entre le champ directement transmis par la fente et le champ issu du sillon, provenant de la diffraction du champ de surface. La rupture de symétrie par rapport au cas précédent permet d'obtenir plus directement (en observant la modulation angulaire d'intensité) des informations sur le champ de surface. Ce type d'élément est l'objet d'une partie importante de l'étude rapportée ici, et sera détaillé par la suite, dans le chapitre 4.

Avant de conclure ce chapitre, voyons brièvement deux exemples parmi de nombreux autres, d'applications des phénomènes décrits jusqu'ici.

## 1.4 Exemples d'applications

### 1.4.1 Optique des plasmons de surface

Dans des structures discrètes, on peut chercher à moduler spatialement l'intensité du champ de surface par des interférences constructives de chaque source sub-longueur d'onde. C'est ce qu'ont réalisé L. Yin et ses collaborateurs [93] en organisant dix-neuf trous de 200 nm de diamètre en arc de cercle de 5  $\mu\text{m}$  de rayon dans une couche d'or. Chaque trou produit un champ de surface, et ces plasmons polaritons de surface interfèrent constructivement pour former un champ intense au centre de courbure de l'arc de cercle. Ce champ peut ensuite être couplé à un guide d'onde gravé dans le plan du métal.

Les travaux de l'équipe J.-C. Weeber [94] montrent quant à eux qu'il est possible de réaliser des réflecteurs pour les plasmons polaritons de surface : des sillons espacés périodiquement permettent de réfléchir un plasmon polariton de surface incident à 45° par rapport à leur grande dimension. L'atténuation spatiale rapide (quelques dizaines de  $\mu\text{m}$ ) des modes de surface limite toute fois fortement la longueur des chemins optiques que l'ont peut créer à partir d'une source unique.

### 1.4.2 Exaltation de la fluorescence

Une application intéressante des propriétés optiques des réseaux d'ouverture sub-longueur d'onde provient de la modification des propriétés d'émission d'un dipôle placé à l'intérieur de ces structures, du fait de l'interaction avec les parois métalliques. Ces effets ont été étudiés par E. Todorov [95]. Une application expérimentale est rapportée dans l'article de H. Rigneault *et al.* [96] : le taux de fluorescence de molécules organiques placées dans des fentes sub-longueur d'onde est augmenté par rapport à sa valeur dans l'espace libre. En effet, la durée de vie des états excités est réduite, et l'intensité de saturation est donc augmentée. Le taux de fluorescence dans le champ intense à l'intérieur des fentes est donc augmenté par rapport au taux de fluorescence dans l'espace libre avec la même illumination.

## 1.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons montré les différentes approches permettant de décrire les processus de transmission de la lumière par des ouvertures sub-longueur d'onde. Le régime sub-longueur d'onde ne permet pas de traitement analytique direct du problème de diffraction, toutes les approximations usuelles étant invalidées. Cependant, des modèles simples permettent de saisir la nature des mécanismes en jeu. On peut retenir certains traits communs à ces modèles : les champs à l'intérieur des trous sont décrits en termes modaux hérités de la théorie des guides d'ondes et le champ de surface est assimilé à un plasmon polariton de surface, ou à une onde évanescente composite diffractée. Dans le cas d'un réseau, les champs de surface et les modes dans les ouvertures sont regroupés dans la base des ondes de Bloch. Les caractéristiques spectrales d'un élément résultent de l'accord de mode à une longueur d'onde donnée du champ et des modes propres de l'élément, fixés par sa géométrie. Quand un tel accord a lieu, une partie du champ évanescent présent à la surface du métal peut être re-transmis dans l'espace libre, donnant lieu à des taux de transmission supérieurs à la fraction ouverte de l'élément. La difficulté réside dans la description des mécanismes de passage (couplage) d'une base à l'autre, et de la manière dont ces bases sont affectées par ce couplage (au sens de l'analogie avec la théorie de Fano).

Appliqué à des motifs discrets, cette reconversion efficace du champ proche en champ propagatif permet de moduler spatialement le champ lointain. Les figures obtenues sont bien décrites par des considérations d'optique diffractive, mais l'optimisation des effets dans le champ proche reste tributaire du calcul numérique. À des distances microscopiques de la surface, la distribution d'intensité peut présenter des maxima et minima locaux, qui pourraient potentiellement être employés comme pièges ou guides dipolaires pour des atomes froids dans des expériences de puces atomiques.

Mais pour une réalisation expérimentale de ce type de piège, plusieurs questions restent posées :

- Quels sont les taux de transmission *quantitatifs* typiques de cette famille d'éléments optiques, dans des unités utiles pour les expérimentateurs – c'est à dire dans les conditions de réalisation d'un piège dipolaire pour des atomes de césium, avec un laser de quelques centaines de milliwatts, etc. ?
- Quelle est la reproductibilité de ces taux de transmission d'un échantillon à l'autre, ou en d'autres termes la fiabilité des procédés de fabrication de ces structures ?
- De manière générale, quelle est la sensibilité des propriétés décrites ci-dessus aux conditions expérimentales ?

C'est pour répondre à ces questions que nous avons engagé une collaboration avec l'équipe de T. W. Ebbesen et H. Lezec, avec comme premier objectif de caractériser les structures de la famille des ouvertures décorées et d'acquérir une connaissance pratique de leur comportement.



# Chapitre 2

## Imagerie par microscopie de fluorescence

### 2.1 Introduction

Les derniers éléments présentés au chapitre précédent, constitués d'ouvertures décorées par des sillons, forment des champs optiques spatialement structurés. Si les études numériques donnent une certaine description de la forme du champ produit par ces motifs, elles ne fournissent pas nécessairement de mesure absolue des taux de transmission, d'autant moins dans les conditions expérimentales qui nous intéressent pour la manipulation d'atomes. Elle ne permettent pas non plus de connaître diverses caractéristiques des objets réels : effets éventuels de la rugosité du métal, conservation des échantillons, reproductibilité du comportement d'un échantillon à l'autre.

Nous avons donc cherché un premier dispositif expérimental permettant d'étudier les champs lumineux produits par les ouvertures sub-longueur d'onde, et leur interaction avec des atomes. Pour des intensités laser inférieures à l'intensité de saturation (régime linéaire), l'intensité de fluorescence à résonance est proportionnelle à la densité atomique et à l'intensité du champ optique (voir le chapitre I-1.2). D'autre part, le jet de césium refroidi décrit dans la première partie de ce mémoire est intense, bien collimaté et permet de réaliser une mesure en continu. Une image de la région d'interaction entre le jet atomique et le faisceau lumineux produit par une ouverture sub-longueur d'onde fournirait donc une image de la distribution d'intensité du champ laser créé par la structure. En employant un microscope pour réaliser cette image, on peut donc étudier par ce biais le champ laser avec une bonne résolution. Ces études ont fait l'objet d'une publication <sup>25</sup>.

Dans ce chapitre, nous décrirons en premier lieu la méthode expérimentale de microscopie de fluorescence (§2.2.1) que nous avons développée, puis nous examinerons les qualités optiques de ce système et les précautions à prendre pour obtenir une cartographie fidèle du champ lumineux (2.3). Nous avons obtenu un grandissement de 4,5 et une résolution limite de 5,5  $\mu\text{m}$ , qui nous ont permis d'appliquer cette méthode à l'étude d'ouvertures uniques entourées de

---

<sup>25</sup>G. Gay, B. Viaris de Lesegno, R. Mathevet, J. Weiner, H.J. Lezec et T.W. Ebbesen. "Atomic fluorescence mapping of optical field intensity profiles issuing from nanostructured slits, milled into subwavelength metallic layers". *Appl. Phys. B*, 81(7) :871 – 874

motifs périodiques, comme ceux décrits dans le chapitre précédent (§1.3.1). Ces éléments permettent d'obtenir un faisceau de faible divergence (de l'ordre de quelques degrés) avec une section transverse micrométrique. On observe sur les simulations numériques que le champ mésoscopique possède un maximum local à une distance de l'ordre de 25  $\mu\text{m}$  de l'ouverture (voir la figure 1.16, et les articles de F. Garcia Vidal [85] et H. Lezec [30]). Nous verrons que les caractéristiques des champs mesurés sont en bon accord avec les simulations, même si les limitations de la méthode expérimentale ne nous ont pas permis d'étudier les détails de la structures du champ dans les vingt premiers micromètres de sa propagation.

## 2.2 Dispositif expérimental

Pour réaliser ces expériences d'imagerie, nous avons modifié le dispositif de jet de césium collimaté déjà décrit au chapitre 1.3.3. Les expériences ont été réalisées dans la chambre 2, adjacente à la chambre où le jet est refroidit par mélasse optique. Nous décrivons d'abord dans ce chapitre les adaptations réalisées sur le montage expérimental pour mener nos expériences de microscopie. Nous rappellerons brièvement les propriétés des divers éléments employés : le jet de césium, l'objectif de microscope et le détecteur.

### 2.2.1 Description générale du dispositif d'imagerie

L'échantillon est tenu sur un support de miroir, pour permettre de l'orienter le plan de l'échantillon parallèlement au jet de césium et à l'axe optique du système d'imagerie. À défaut d'une meilleure référence, on considère que le plan de l'échantillon est parallèle au jet quant il est parallèle au hublot auquel il fait face dans l'enceinte sous vide. On s'assure de ce parallélisme par rétro-réflexion d'un laser He-Ne sur le hublot et sur l'échantillon. Le support de miroir est fixé au bout d'un tube de 20 mm de diamètre et 400 mm de long tenu sur un translation trois axes elle même montée sur une bride DN 200 fixée à une ouverture latérale de la chambre. Au bout du tube, un hublot DN 16 permet d'amener le faisceau laser jusqu'à l'échantillon. Ce faisceau est issu de la source laser MOPA décrite dans la première partie, asservie à résonance sur la transition  $6S_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6P_{3/2}, F' = 5$  du césium et soigneusement collimaté. La focalisation sur l'échantillon est obtenue par une lentille de 1000 mm. Un polariseur (cube polariseur +  $\lambda/2$ ) est placé juste avant le hublot DN 16.

La principale difficulté consiste à pouvoir approcher assez l'objectif de microscope de la zone d'interaction à l'intérieur de l'enceinte sous vide. Pour cela, nous avons construit une bride entrante (DN 65), fermée par une fenêtre à faces parallèles. Dans la mesure où un vide de  $10^{-7}$  mBar est suffisant (on veut juste que le libre parcours moyen des atomes soit de quelques dizaines de cm), l'étanchéité est assurée par un joint torique en caoutchouc et un peu de graisse à vide. La distance entre la zone d'interaction et la fenêtre est suffisamment faible (environ 28 mm) pour pouvoir utiliser un objectif de microscope de grande distance de travail. Celle du modèle employé (Mitutoyo APO 10X) est de 30,5 mm. L'objectif est porté par un tube en laiton, lui même tenu sur trois translations, permettant l'alignement sur les trois axes. Le diamètre du tube en laiton doit être le plus important possible pour ne pas limiter le champ de vue, tout en permettant de déplacer l'objectif latéralement dans la bride entrante. Nous employons un tube de 50 mm de diamètre permettant un déplacement latéral de 5 mm à l'intérieur de la

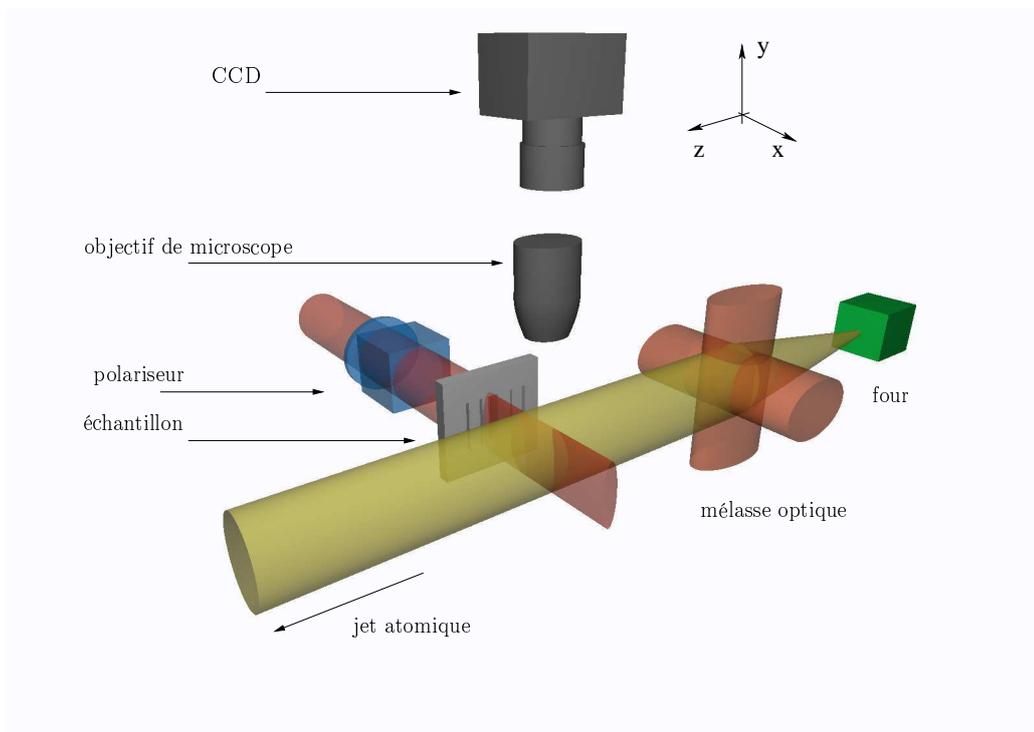


FIG. 2.1: Dispositif d'imagerie par microscopie de fluorescence. L'échantillon est plongé dans le jet atomique et illuminé par un faisceau laser focalisé sur la face arrière, asservi à résonance et correctement polarisé. L'image est faite à travers un objectif de microscope.

bride entrante. L'image de la région d'interaction est renvoyée à l'infini. Cette image est ensuite reprise par un objectif commercial (Tameron) de focale 90 mm sur le capteur CCD.

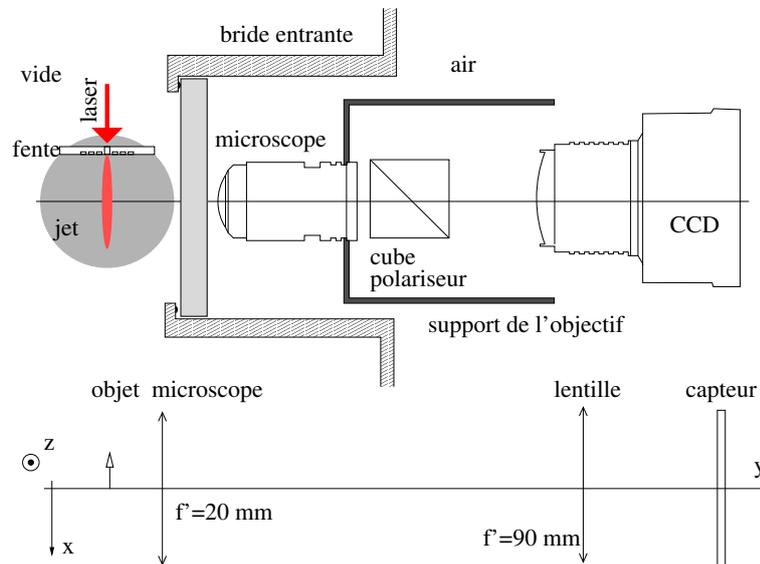


FIG. 2.2: Vue détaillée des éléments optiques.

Pour l'alignement du dispositif, on utilise une source brillante (sur les plaques d'échantillons est généralement gravé un réseau de dix fentes de  $2 \mu\text{m}$  de largeur et de  $10 \mu\text{m}$  de période). On vérifie l'homogénéité de la densité du jet, du mode spatial du laser et le point.

Voyons maintenant plus en détail les caractéristiques des divers éléments optiques employés.

## 2.2.2 Caractéristiques des éléments optiques

### Objectif de microscope

La table 2.1 donne les caractéristiques optiques nominales de l'objectif de microscope.

Grossissement nominal	$10 \times$
Ouverture numérique	0,26
Longueur focale	20 mm
Résolution ultime	$1,1 \mu\text{m}$
Profondeur de champ nominale	$4,1 \mu\text{m}$

TAB. 2.1: Caractéristiques optiques de l'objectif de microscope

### Caméra CCD

Le détecteur employé est une caméra CCD Princeton Instruments. Le capteur CCD TEA 512 est refroidit par effet Peltier et rétro-éclairé. La matrice fait  $512 \times 512$  pixels de  $24 \mu\text{m}$ , sans espacement entre les pixels. Son efficacité quantique est de l'ordre de 70 % à 852 nm. Notre résolution est limitée par la taille d'un pixel.

Le grandissement transverse du système est donné par le rapport des focales de l'objectif d'imagerie et de l'objectif de microscope :  $G_t = f_{ccd}/f_m = 90/20 = 4,5$ . Ainsi, un pixel de  $24 \mu\text{m}$  correspond à un objet de  $5,3 \mu\text{m}$ .

La profondeur de champ théorique est donnée par le rapport de la résolution à l'ouverture numérique, soit  $22 \mu\text{m}$  pour une résolution de  $5,3 \mu\text{m}$ . Un objet situé à une distance de  $22 \mu\text{m}$  en amont ou en aval du plan focal objet sur l'axe optique sera décalé de un pixel par rapport au point focal image. On peut donc considérer qu'un objet de  $44 \mu\text{m}$  selon l'axe optique est correctement imagé. La hauteur des ouvertures étudiées (voir §2.4.1) est de  $50 \mu\text{m}$ , à peine supérieure à la profondeur de champ, et ne dégrade donc pas trop la résolution.

La principale contribution au signal de fond de l'image provient de la lumière laser diffusée par les défauts des échantillons. Cette lumière intense en comparaison du signal de fluorescence a la même polarisation que le laser d'excitation (polarisation TM). Elle est donc presque totalement réfléchiée par le cube polariseur placé entre l'objectif de microscope et la lentille de re-focalisation (voir figure 2.2), alors que la lumière émise par fluorescence n'est pas polarisée, la moitié du signal traverse donc le cube. Cette astuce nous a permis de gagner un facteur 5 sur le rapport signal sur bruit.

### 2.2.3 Caractéristiques du jet

Rappelons rapidement les caractéristiques du jet :

- Largeur à mi-hauteur :  $3 \text{ mm}$
- Divergence : moins d' $1 \text{ mrad}$
- Densité de flux :  $\propto 10^{12} \text{ s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$

Les temps de pose sont longs (de l'ordre de 100 secondes), on prête particulièrement attention à la stabilité du refroidissement transverse.

Selon la qualité du réglage de la mélasse, il est possible que la distribution de densité du jet selon  $x$  ne soit pas homogène dans le champ de vue. On corrige ce problème en faisant une image avec un champ optique d'intensité constante selon  $x$  (par exemple avec le laser d'excitation libre), ce qui donne la distribution de densité du jet. Normalisée, elle est utilisée pour corriger les mesures.

Dans cette méthode c'est en quelque sorte le faisceau atomique qui est utilisé pour "éclairer" le champ laser. Cela implique quelques précautions à prendre lors de l'acquisition et l'interprétation des images.

## 2.3 Imagerie, aberrations

Pour faire une mesure fidèle du champ laser, trois aspects de l'interaction doivent être pris en compte :

- la durée de vie de l'état excité,
- la saturation de la transition,
- et l'effet Doppler longitudinal.

Nous décrivons ici les conséquences de ces trois phénomènes pour l'imagerie

### 2.3.1 Flou cinétique

Du fait de la durée de vie finie  $\tau$  de l'état excité, il y a un délai entre l'absorption d'un photon du champ laser et sa ré-émission par l'atome. Un atome peut donc émettre un photon après avoir quitté le champ lumineux. Cet effet produit un flou selon l'axe  $z$ . Cependant, la distance typique parcourue par un atome entre l'absorption et l'émission est donnée par  $\tau \cdot \bar{v}$ , soit ici environ  $12 \mu\text{m}$ , là encore de l'ordre de notre résolution spatiale. La durée de vie finie de la transition résonnante implique aussi qu'un atome ne peut pas absorber un flux arbitrairement élevé de photons. Détaillons maintenant les conséquences pour l'imagerie de cet effet de saturation.

### 2.3.2 Saturation

Si l'intensité laser est trop importante, la transition peut être saturée (voir le graphique de la figure I-3.9, p.46). La relation entre le taux de fluorescence et l'intensité laser n'est alors plus linéaire, ce qui induit une déformation de la distribution d'intensité mesurée. On s'assure d'être en régime linéaire en réalisant des images à des intensités différentes. Par la suite, on se place sur la courbe de saturation de manière à ce que la région d'intensité maximale soit proche de la saturation, en restant dans le régime linéaire. Le rapport signal/bruit est alors optimal. Si on connaît l'intensité de saturation dans la polarisation employée, cette mesure permet aussi d'évaluer le taux de transmission des structures (voir §2.4.4).

Notre méthode d'imagerie repose sur l'interaction résonnante entre les atomes et le laser. Or nous avons vu (§1.3.1, p.114) que le champ émis par les structures que nous souhaitons étudier est un peu divergent (quelques degrés). Donc, même si le jet est très bien collimaté (à moins de 1 mrad) grâce à la mélasse optique, il faut prendre en compte l'effet Doppler et la dispersion de vitesse longitudinale dans le jet.

### 2.3.3 Effet Doppler

Le jet est refroidit transversalement par mélasse optique, la vitesse des atomes selon  $x$  est donc très faible. Par contre, la vitesse moyenne selon  $z$  est importante, et la distribution longitudinale de vitesse est proche d'une distribution maxwellienne, c'est-à-dire  $\mathcal{F}(v_z) \propto v^2 \exp(-mv^2/2k_B T)$  (voir au §I-3.3, p.53 la distribution de vitesse mesurée expérimentalement). Dès lors, la fréquence des photons dont le vecteur d'onde possède une composante non négligeable selon  $z$  est décalée par effet Doppler pour les atomes, comme nous l'avons illustré schématiquement sur la figure 2.3.

Si se désaccord est trop important, l'interaction n'est plus résonnante. Le décalage Doppler moyen s'écrit :

$$\Delta\omega_{Doppler} = k \cdot \bar{v} \cdot \sin(\theta) \quad (2.1)$$

Ceci entraîne une disparition du signal de fluorescence pour des vecteurs  $\mathbf{k}$  d'angle  $\theta$  tel que le décalage Doppler est plus grand que la demi-largeur de raie. On peut donc définir un angle critique  $\theta_c$  donné par :

$$k \cdot \bar{v} \cdot \sin(\theta_c) = \Gamma/2$$

Dans notre cas  $\theta_c \simeq 30 \text{ mrad}$  ( $1,7^\circ$ )

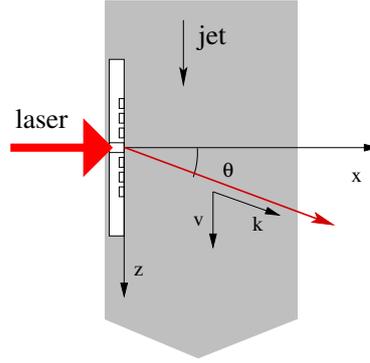


FIG. 2.3: Schéma de l'interaction hors de l'axe. Le vecteur d'onde du photon  $\mathbf{k}$  forme un angle  $\theta$  par rapport à l'axe  $x$ , perpendiculaire à un atome du jet de vitesse  $\mathbf{v}$ .

Pour surmonter ce problème, on peut balayer la fréquence du laser autour de la résonance. Pour un désaccord  $\delta_\omega$  du laser et un angle  $\theta$ , le taux de fluorescence d'un atome de vitesse  $v$  s'écrit :

$$\rho_{22}(\delta_\omega, \theta, v) = \frac{\Omega^2}{\frac{\Gamma^2}{2} + \delta_\omega - k \cdot v \cdot \sin(\theta) + \frac{\Omega^2}{2}} \quad \text{avec } \frac{\Omega^2}{2} \ll \frac{\Gamma^2}{2} \text{ en régime linéaire} \quad (2.2)$$

Soit  $\mathcal{F}(v)$  la distribution de vitesse dans le jet. Le signal mesuré par unité de temps à  $\delta_\omega$  et  $\theta$  donné est proportionnel à l'intégrale du taux de fluorescence de chaque classe de vitesse pondérée par la distribution de vitesse.

$$S(\delta_\omega, \theta) dt = A \int_0^\infty \mathcal{F}(v) \rho_{22}(\delta_\omega, \theta, v) dv dt \quad (2.3)$$

Le graphique de la figure 2.4 donne le taux de fluorescence intégré en fonction de l'angle d'émission calculé pour des désaccords allant de  $-3\Gamma$  à  $3\Gamma$  par pas de  $\Gamma$ . L'unité d'angle est telle que

$$\theta = 1 \equiv k \cdot v \sin \theta = \Gamma$$

On a considéré ici une distribution de vitesse maxwellienne :  $\mathcal{F} = v^2 \exp(-v^2)$  dans les unités réduites. Si, au cours d'une acquisition, on accumule les signaux obtenus pour chaque valeur de désaccord comprises entre  $-n\Gamma$  et  $n\Gamma$ , on obtient une distribution approximativement "plate" du taux de fluorescence en fonction de  $\theta$ . Le graphe de la figure 2.5 donne un tracé de  $\sum_{j=-n}^n S(j \cdot \Gamma, \theta)$  pour  $n = (0, 5, 8, 16 \text{ et } 20)$ .

On obtient un résultat similaire en balayant la fréquence du laser d'une gamme  $2\Delta\omega$  autour de la résonance. On considère un balayage linéaire de durée égale au temps de pose  $t_0$ . le signal mesuré  $S_{total}$  s'écrit :

$$S_{total}(\theta) = \int_0^{t_0} \int_{-\Delta\omega}^{+\Delta\omega} S(\delta_\omega, \theta) d\delta_\omega dt \quad (2.4)$$

On obtient un taux d'absorption homogène pour des vecteurs d'onde dans un cône d'émission d'angle  $\Delta\theta$  tel que :

$$\sin(\Delta\theta) = \frac{\Delta\omega}{k \cdot v}$$

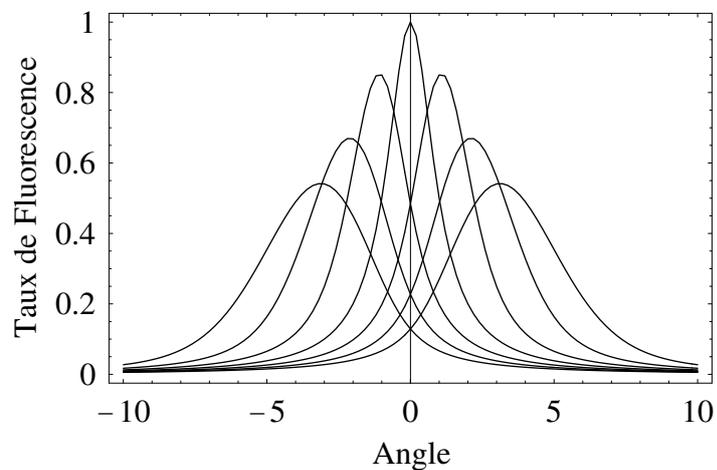


FIG. 2.4: Profil d'émission en fonction de l'angle  $\theta$  pour différents désaccords.

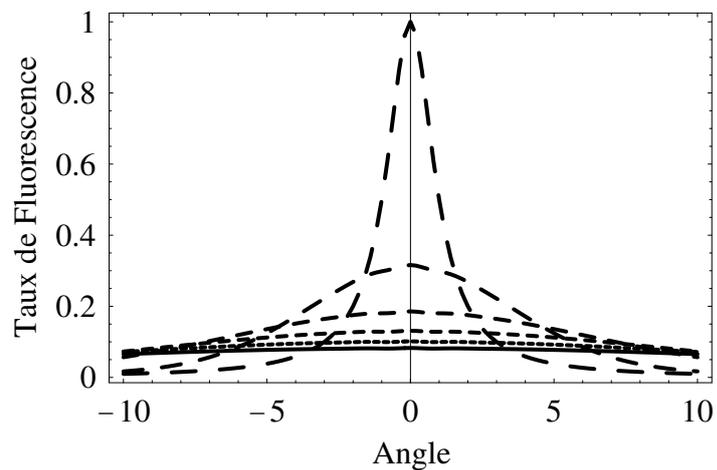


FIG. 2.5: Taux de fluorescence en fonction de l'angle  $\theta$  et de la largeur du balayage. Les courbes de hauteurs décroissantes correspondent à des balayages de 0,5,8,16 et 20  $\Gamma$ .

Par exemple un balayage de  $\Delta\omega = 60$  MHz correspond à une ouverture de  $\Delta\theta = 20^\circ$ . Cette compensation se fait cependant au prix d'une perte de signal d'un facteur égal au rapport  $\Gamma/\Delta\omega$ , correspondant au rapport du temps passé à résonance par chaque classe de vitesse et du temps total d'acquisition. Remarquons d'ailleurs que la fréquence de balayage doit être suffisamment lente pour s'assurer qu'un atome ne "voit" pas le changement de fréquence pendant qu'il traverse la zone d'interaction. Celle-ci fait 1,5 mm, un atome à  $200 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  met donc 7,5  $\mu\text{s}$  à la traverser. La fréquence de balayage doit donc être petite devant 40 kHz, ce qui est toujours le cas en pratique. Pour nous assurer de la stabilité du balayage, nous avons mis au point un asservissement électronique spécifique permettant de maintenir la résonance au centre de la gamme de désaccords balayée.

La méthode décrite ici a été appliquée à l'étude des champs optiques produits par des ouvertures sub-longueur d'onde.

## 2.4 Imagerie de champs issus de structures sub-longueur d'onde

### 2.4.1 Échantillons étudiés

Les échantillons que nous avons étudiés ont été réalisés par H. Lezec à l'Université Louis Pasteur de Strasbourg, à l'ISIS, à l'aide d'un faisceau d'ions focalisé – ou FIB (FEI Nova-600 Dual-Beam system, ions Ga+ de 30keV). Ces échantillons sont gravés sur une couche d'argent de 350 nm déposée par évaporation sur un substrat de verre.

Ils sont constitués d'une fente centrale de 100 nm de large et 50  $\mu\text{m}$  de haut entourée d'un nombre variable de sillons de même hauteur espacés périodiquement de 830 nm, le centre du premier sillon étant situé à 830 nm du centre de la fente. La figure 2.6 montre une image d'un de ces éléments par microscopie électronique à balayage.

Plusieurs facteurs ont guidé la conception de ces échantillons. Premièrement, la périodicité a été choisie de manière à optimiser l'effet de collimation à 852 nm, la longueur d'onde résonnante de la raie D2 du césium. Selon le modèle donné au §1.3.1, les sillons doivent donc être espacés d'un nombre entier de longueur d'onde effective du champ de surface. Les expériences menées précédemment par l'équipe de T. Ebbesen ont permis d'évaluer approximativement cette période (à partir de lois d'échelles obtenues à d'autres longueurs d'ondes). Des échantillons de périodes diverses ont ensuite été fabriqués, puis testés, avant de conserver la période optimale de 830 nm. Nous analyserons plus en détail l'origine de cet optimum au chapitre suivant.

La grande dimension de la fente selon  $y$  permet d'augmenter le signal collecté par fluorescence, celui-ci étant supposé invariant selon cette dimension <sup>26</sup>. Cette taille est cependant limitée par la profondeur de champ du système d'imagerie (voir le paragraphe 2.2.2).

### 2.4.2 Images

La figure 2.4.2 donne deux exemples d'images obtenues avec la méthode décrite ci-dessus pour des fentes entourées de 10 et 30 sillons latéraux. Dans ces images, le signal maximal est

<sup>26</sup>l'angle de divergence du faisceau dû à la diffraction dans cette dimension est faible, de l'ordre de  $1^\circ$

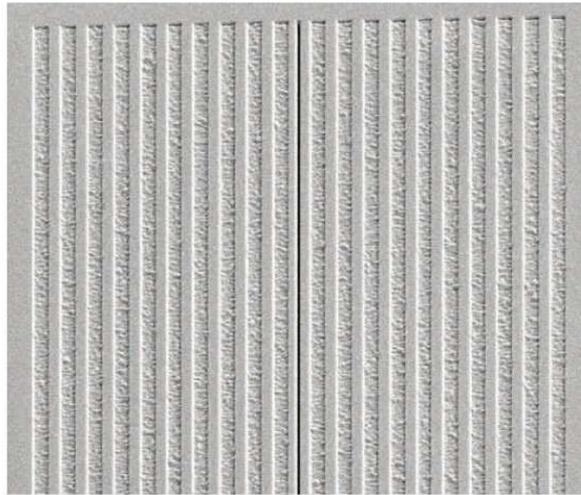


FIG. 2.6: Image par microscopie électronique d'une structure comportant une fente centrale de 100 nm et  $2 \times 10$  sillons latéraux de 415 nm de large, espacés de 830 nm. La structure fait 50  $\mu\text{m}$  de haut. Le microscope utilisé est intégré à l'outil de fabrication des structures.

de l'ordre de 700 coups sur le capteur CCD. Nous avons accumulé sept acquisitions de 100 secondes, chacune corrigée d'un fond diffus obtenu en décalant le laser hors de la résonance, ce fond représentant 2000 coups en 100 secondes. Le bruit<sup>27</sup> après soustraction du fond est de l'ordre de 50 coups, soit un rapport S/B de 14.

On peut observer directement sur ces images la réduction de la divergence du faisceau produit lorsqu'on augmente le nombre de sillons. Le plan de l'échantillon est représenté par une ligne en pointillés. À droite de cette ligne, on a l'image réelle de la région d'interaction, à gauche, on image le reflet de cette zone sur le film d'argent.

Cela n'apparaît pas clairement sur les images, mais les 4 pixels les plus proches de la source sont saturés. Ceci est dû à de la lumière diffractée selon l'axe  $y$  par la fente et les défauts de la surface (on peut voir de tel pixels saturés dans le plan de l'échantillon de l'image 2.7(b)). Le cube polariseur permet de filtrer une grande partie de cette lumière – de l'ordre de 90 % – mais cette lumière parasite reste très intense par rapport au signal de fluorescence. Cette région saturée correspond aux 20 premiers micromètres autour de la source. Cette saturation et la limite de résolution interdisent d'observer la structure du champ à des distances mésoscopiques (quelques longueurs d'ondes) de la source.

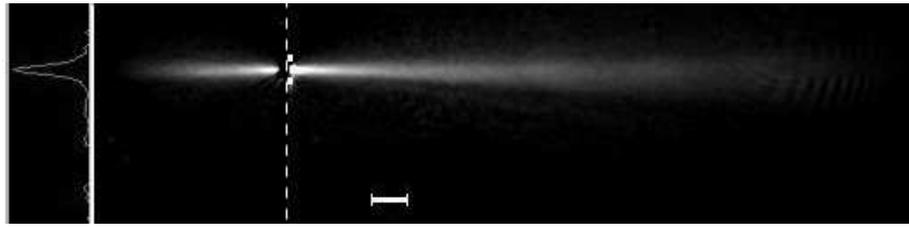
On obtient cependant une cartographie complète du premier millimètre de propagation du champ produit, que l'on peut exploiter numériquement.

### 2.4.3 Traitement des données

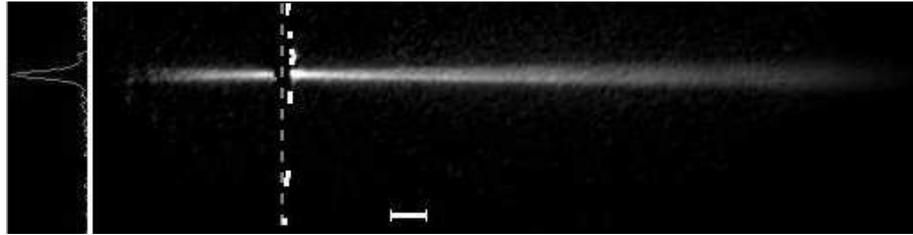
#### Sections transverses

En réalisant des coupes transverses de ces images, on peut obtenir une mesure de la largeur à mi hauteur du faisceau produit par le motif. On a ainsi pu comparer les caractéristiques

<sup>27</sup>Ce bruit correspond à l'écart type du signal pour des pixels d'une région non éclairée par le faisceau



(a) 10 sillons



(b) 30 sillons

FIG. 2.7: Images par microscopie de fluorescence de fentes entourées par des sillons périodiques. Temps de pose :  $7 \times 100$  s, puissance laser :  $5 \text{ W.cm}^2$ , balayage de fréquence : 20 MHz ( $4\Gamma$ ). Les réglés blancs sur les images représentent une distance de  $100 \mu\text{m}$

spatiales des motifs à 10, 20 et 30 sillons latéraux (figure (2.8)).

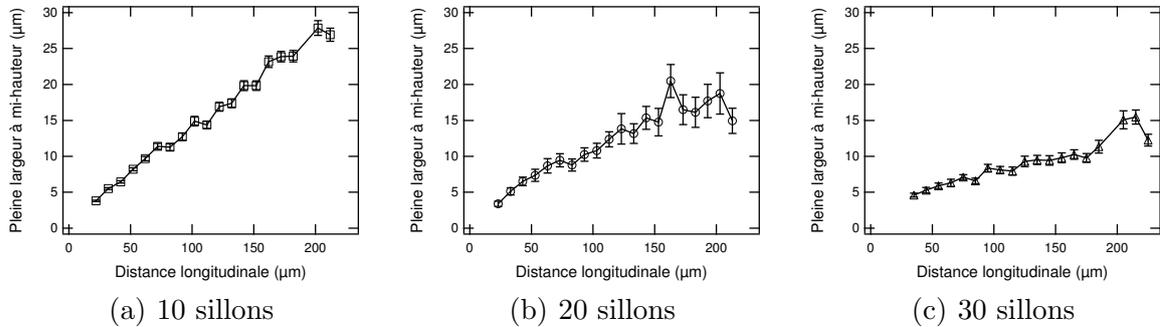


FIG. 2.8: Séries de coupes transverses des champs produits par des motifs à 10, 20 et 30 sillons. Chaque point correspond à une intégration de 10 pixels selon l'axe x.

Plusieurs remarques peuvent être faites à l'examen de ces graphiques :

- La largeur augmente de manière globalement linéaire avec la distance, on ne voit pas de point focal, où on pourrait suspecter la présence d'un maximum d'intensité du champ.
- On peut déduire de ces graphiques une divergence pour chacun des motifs. Comme il sera discuté plus loin, cette divergence est inversement proportionnelle au nombre de sillons dans les réseaux adjacents.
- La largeur des distributions est de l'ordre de 10 microns au voisinage de la source, en bon accord avec les simulations de L. Martin-Moreno et F. Garcia-Vidal [97].

À grande distance de la source, une section transverse d'une image du faisceau lumineux permet de déduire la distribution angulaire d'intensité émise par l'ouverture. Cette mesure peut être comparée à une mesure optique en champ lointain de cette distribution, comme nous allons le voir au paragraphe suivant.

#### 2.4.4 Comparaison des mesures optiques et atomiques de la divergence

Le dispositif de mesure optique employé est représenté schématiquement sur la figure 2.9. Pour observer la distribution angulaire d'intensité émise par ces structures, nous avons développé un premier dispositif simple à l'aide de notre caméra CCD.

##### Dispositif de mesure optique

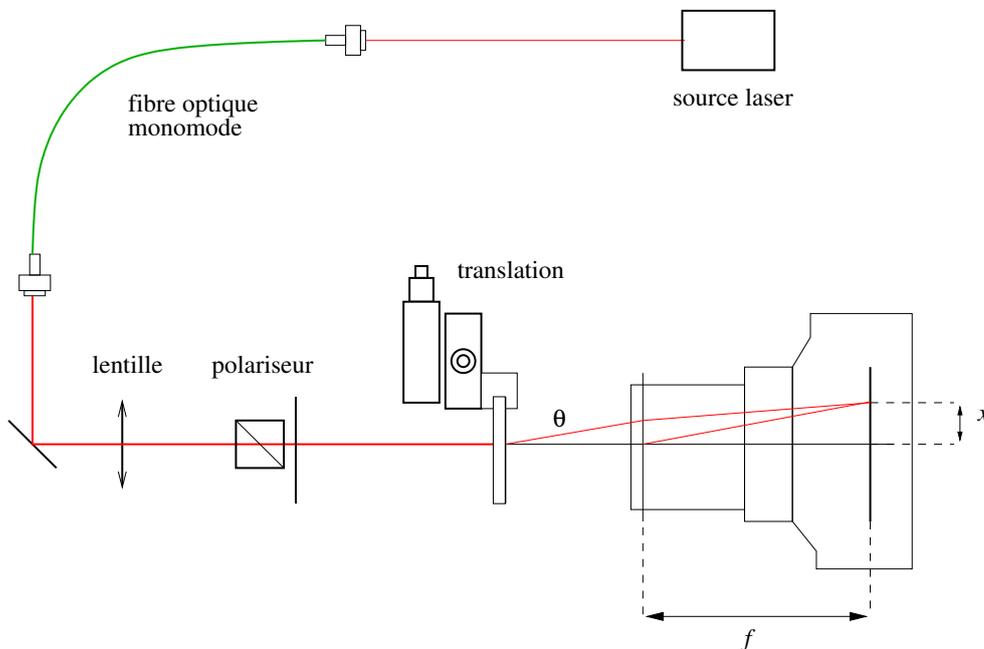


FIG. 2.9: Premier dispositif de mesure de la distribution angulaire

Le dispositif de mesure est schématisé sur la figure L'objectif de la caméra CCD est mis au point à l'infini. Ainsi, tous les rayons formant un angle  $\theta$  par rapport à l'axe optique sont focalisés à une distance  $x$  du centre du capteur, avec la relation simple  $x = \sin \theta / f$  où  $f$  est la longueur focale de l'objectif.

Pour les motifs à une dimension (fentes et sillons), on peut intégrer le signal selon l'axe de la fente. L'alignement de la caméra par rapport à l'axe optique est réalisé en superposant les réflexions du faisceau laser incident sur les différents dioptries de l'objectif. Si ce dispositif à l'avantage de la simplicité et d'une grande sensibilité, il présente cependant quelques inconvénients :

- une grande sensibilité aux sources de lumières parasites qui sont imagées et viennent interférer sur le capteur avec la source étudiée.

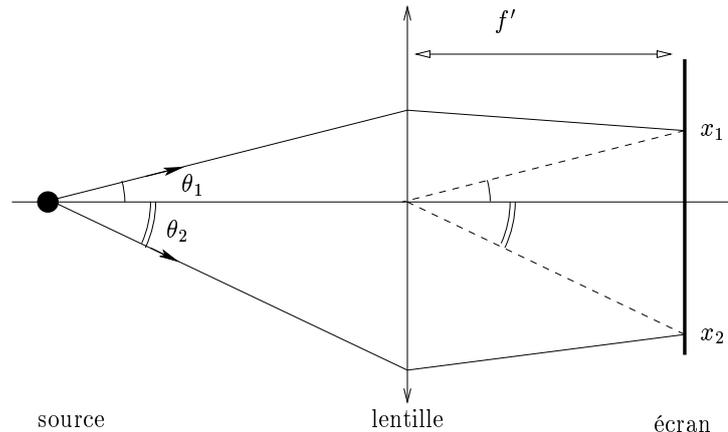


FIG. 2.10: Principe de la mesure de l'angle d'émission

- comme on travaille en lumière cohérente, tous les défauts éventuels dans l'objectif (poussières...) produisent des figures d'interférences étendues sur le capteur.
- on a utilisé des objectifs de 50 et 90 mm de focale. Le capteur CCD fait  $3/4'' \times 3/4''$ , soit  $19 \times 19 \text{ mm}^2$ . On en déduit l'angle maximal mesurable,  $\theta = 11^\circ$ , avec la focale de 50 mm.

### Comparaison des résultats

Les mesures de distributions angulaires évaluées par la méthode optique et la méthode de microscopie atomique sont données dans la figure 2.4.4. La mesure atomique est obtenue en réalisant une image du faisceau à grande distance de la source (10 mm), si on considère qu'on a une source ponctuelle, l'écart à l'axe optique donne directement la divergence. On a une très bonne concordance entre les profils angulaires déduits de l'imagerie par microscopie de fluorescence et par la méthode optique.

À partir de ces mesures, on peut évaluer la divergence en fonction du nombre de sillons (voir figure 2.4.4). Tout se passe comme si l'ensemble de la structure émettait de la lumière, c'est à dire que la divergence est la même que pour un trou de la même taille que l'ensemble de la structure. En plus de ces données géométriques, les conditions expérimentales d'acquisition de ces images permettent de déduire un ordre de grandeur pour le taux de transmission de ces ouvertures.

### Taux de transmission

On a en effet vu que la puissance du laser employée était la puissance maximale telle que le régime d'interaction reste linéaire. L'intensité maximale du champ produit par l'ouverture est donc de l'ordre de l'intensité de saturation. Sur les images obtenues sur la figure 2.4.2, la section transverse du faisceau produit par l'ouverture au maximum d'intensité peut être estimée à  $20 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m} = 10^3 \mu\text{m}^2$ , et l'intensité maximale doit être de l'ordre de l'intensité effective de saturation, telle que déterminée au paragraphe I-3.2.2, environ  $5 \text{ mW.cm}^{-2}$ . La puissance totale dans le faisceau est donc de l'ordre de 50 nW. D'autre part, ces images ont été réalisées avec une intensité laser incidente sur l'ouverture de  $5 \text{ W.cm}^{-2}$ , et la surface de l'ouverture vaut

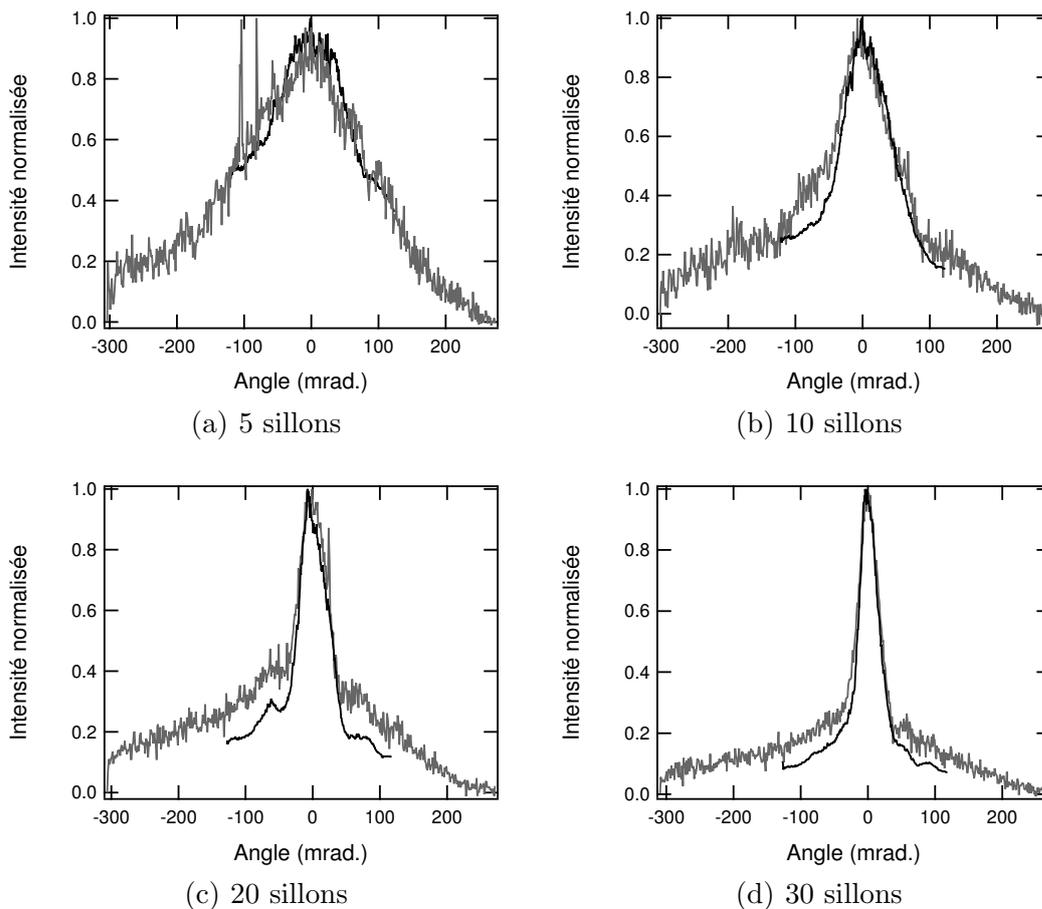


FIG. 2.11: Comparaisons des mesures de profil angulaire obtenues par microscopie de fluorescence et par le dispositif présenté ci-dessus. En gris : données atomique, en noir : données optiques. Seule l'intensité a été normalisée pour pouvoir superposer ces données, les deux calibrages de l'angle sont indépendant.

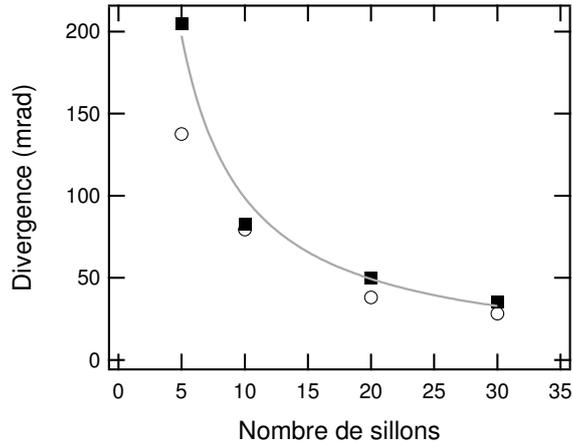


FIG. 2.12: Divergence (plein angle à mi-hauteur) en fonction du nombre de sillons, méthodes optiques et atomiques. Cercles ouverts : mesure atomique, carrés pleins : mesure optique. Trait plein : ajustement des données optiques par une fonction  $a/N$ ;  $a = 0,8$ . Les divergences des figures de diffraction associées à des ouvertures de largeurs égales à l'extension spatiale des structures donneraient une constante  $a = 0,9$

$0,1 \times 50 \mu\text{m}^2$ , la puissance incidente sur la surface de la fente vaut donc 250 nW. Un cinquième de la puissance incidente a donc été transmise dans le faisceau propageant,  $T \simeq 0,2$ , comme on peut en outre le mesurer directement en champ lointain.

## 2.5 Conclusion

La méthode démontrée ici permet d'obtenir une vue d'ensemble de champs structurés à une échelle microscopique et à des échelles mésoscopiques de la source. Les contraintes mécaniques du dispositif expérimental, et la faiblesse du signal de fluorescence (de l'ordre de 1 coup par seconde par pixel sur le détecteur) dans le régime linéaire ne nous ont pas permis de pousser cette technique à la limite de résolution théorique de  $5 \mu\text{m}$ . La quantité importante de lumière diffusée par la source et par les défauts de surface gêne en outre l'analyse du champ sur les premiers micromètres de propagation. Une augmentation du flux atomique permettrait d'augmenter le grossissement du microscope (en remplaçant l'objectif de 90 mm par une lentille de 200 mm) et de meilleurs rapports signal sur bruit, ce qui améliorerait la qualité des détails du champ imagé.

Ces premières expériences d'interaction entre des champs optiques issus de structures sub-longueur d'onde nous auront permis une première approche de ces éléments optiques. Nous avons notamment appris les précautions à prendre lors de leur manipulation,<sup>28</sup> et leur stabilité à l'atmosphère. Les grandeurs utiles déduites de ces mesures (transmission et divergences) sont des caractéristiques du champ lointain, et peuvent aussi être obtenues par des mesures purement optiques. Pour approfondir notre étude nous avons donc mis en place plusieurs dispositifs de caractérisation des champs lointains produits. Ceux-ci sont décrits dans les chapitres suivants.

<sup>28</sup>Les films d'argents sont très sensibles à l'humidité et il est important de les manipuler avec des gants.



# Chapitre 3

## Ouvertures décorées par des motifs périodiques

### Introduction

Comme nous l'avons vu, les grandeurs que nous avons pu obtenir par microscopie de fluorescence, le taux de transmission et la distribution angulaire d'intensité, sont des caractéristiques du champ lointain et donc accessibles à une mesure purement optique. Dans une première section, nous présenterons les dispositifs mis en place pour mesurer ces deux propriétés.

Nous avons commencé nos mesures par l'étude de structures particulièrement intéressantes pour nous : les structures de type œil de boeuf, de symétrie circulaire (section 3.2). Le champ optique est dans ce cas confiné dans les deux dimensions transverses, ce qui permettrait d'envisager de piéger des atomes froids dans le faisceau, ou de guider des atomes du jet à travers le trou central dans des expériences de lithographie. Nous détaillerons les spectres angulaires et les taux de transmission d'ouvertures décorées sur une et deux faces. Toutefois, nous verrons que les taux de transmissions mesurés sont faibles.

Pour les structures à deux faces, ils correspondent à un taux de transmission global inférieur à  $2,6 \cdot 10^{-5}$  pour un faisceau laser raisonnablement focalisé sur l'ouverture, avec un diamètre en  $1/e^2$  de  $15 \mu\text{m}$ . Cela limite considérablement les applications à l'optique atomique. Pour pouvoir optimiser ce taux de transmission, et réaliser des structures plus efficaces, nous avons voulu mieux comprendre les processus en jeu dans ces structures. Cette recherche s'est appuyée sur le modèle simple de H. Lezec (voir le chapitre 1.1.2, p.94), publié à l'époque où ces mesures ont débutées [37]. Nous avons voulu vérifier sa capacité à prédire le comportement de divers motifs sub-longueur d'onde. Nous avons commencé des études systématiques sur des fentes uniques entourées de cinq sillons espacés périodiquement. Les résultats de ces études, et leur interprétation dans un cadre interférentiel "naïf" sont exposés à la section 3.3. Nous verrons alors quelles questions restaient ouvertes après ces études, et comment elles nous ont amenés à entreprendre les expériences rapportées au chapitre suivant.

Présentons dans un premier temps les montages expérimentaux que nous avons mis en place.

### 3.1 Dispositifs de mesure

Pour les deux dispositifs présentés ici, l'échantillon est éclairé par un faisceau issu d'un laser à semi-conducteur, le MOPA déjà présenté dans la première partie (§I.2.3.1). Le laser est asservi en fréquence<sup>29</sup> sur la transition  $6S_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6P_{3/2}, F' = 5$ . Le faisceau est injecté dans une fibre monomode. Le mode TEM<sub>00</sub> en sortie de fibre est repris par une lentille de focale 1000 mm. Il traverse ensuite un cube polariseur et une lentille  $\lambda/2$ . Le diamètre du faisceau en  $1/e^2$  au niveau de l'échantillon est de 300  $\mu\text{m}$ , la longueur de Rayleigh étant de l'ordre de 30 cm. L'échantillon est maintenu sur une translation à deux axes. Le support permet en outre de le faire tourner autour d'un axe horizontal, pour l'alignement des axes des fentes avec le reste du dispositif.

#### 3.1.1 Mesure de l'intensité transmise

##### Description

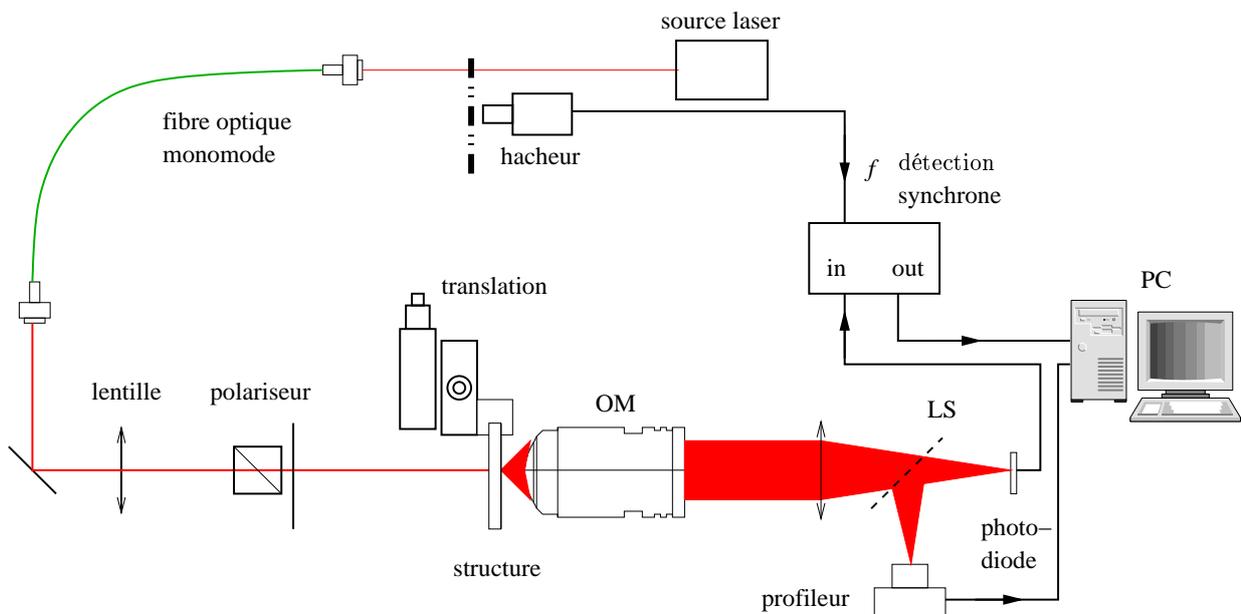


FIG. 3.1: Dispositif de mesure du taux de transmission. OM : objectif de microscope – LS : lame séparatrice.

La figure 3.1 décrit le dispositif de mesure du taux de transmission des ouvertures sub-longueur d'onde : un objectif de microscope collecte la lumière transmise par la structure étudiée, qui est ensuite focalisée par une lentille 200 mm de focale et 50 mm de diamètre sur deux capteurs : un profileur de faisceau (Beam Star Ophir) et une photodiode (BPW34) connectée directement sur un câble coaxial.

L'objectif de microscope est le modèle Mitutoyo APO 10X déjà décrit au chapitre précédent. L'ouverture numérique de 0,26 permet de collecter la lumière dans un cône de  $15^\circ$  de demi-angle,

<sup>29</sup>L'asservissement sert ici à maintenir le laser dans un fonctionnement stable et monomode.

ce qui est suffisant pour les faisceaux émergents relativement collimatés étudiés ici. Le profileur de faisceaux permet un positionnement précis de chaque motif sur l'axe optique et surtout de détecter les trous parasites proches de la structure étudiée, qui faussent la mesure. Remarquons que le profileur de faisceau peut en théorie être calibré en puissance et permettre une mesure absolue de l'intensité. Nous n'avons pas utilisé cette option, du fait du niveau important de fond dans la mesure (le capteur n'est pas refroidi, il y a donc un fort bruit thermique). D'autre part, l'objet imagé s'étend sur un seul pixel dans le cas d'un trou source sub-longueur d'onde, et la réponse du capteur est dans ce cas hasardeuse.

Pour permettre la détection de signaux même très faibles, le photo-courant est mesuré à l'aide d'une détection synchrone (Stanford Research System SR830 DSP)<sup>30</sup>. La modulation du signal est assurée par un hacheur placé sur le faisceau avant l'entrée de la fibre. Cette modulation a l'avantage de la simplicité. Cependant, il faut prendre soin d'isoler la photodiode de la lumière issue de la diffusion sur les éléments optiques, modulée à la fréquence de détection, et qui n'est donc pas filtrée par la détection synchrone. On vérifie que le signal mesuré est négligeable dans le cas où l'échantillon est éclairé dans une région dépourvue de trous.

### Alignement

L'objectif de microscope est centré sur l'axe optique en utilisant le faisceau laser sans échantillon. On cherche pour cela à superposer les réflexions du laser sur les différents dioptries de l'objectif au faisceau incident, en plaçant un diaphragme en amont de l'objectif. L'échantillon est ensuite positionné sur son support, et orienté de manière à rétro-réfléchir le faisceau d'excitation. Les capteurs (profileur et photodiode) sont alignés à l'aide du réseau micrométrique gravé sur les plaques d'échantillons :

- On cherche à obtenir une image nette du réseau sur le profileur de faisceau en traduisant l'objectif de microscope selon l'axe optique.
- La photodiode est placée à la même distance de la lame séparatrice que le profileur, et on maximise le signal mesuré.

### Sensibilité

Le gain nominal de la photodiode dans l'infrarouge est de  $0,5 \text{ A.W}^{-1}$ . La détection synchrone permet de détecter des courants de l'ordre du picoampère. Ce dispositif permet donc de mesurer des puissances incidentes de l'ordre du picowatt. Avec une ouverture numérique de 0,26, donc un angle solide de détection de  $2\pi(1 - \cos(\arcsin(0,26))) = 0,22 \text{ sr}$ , l'ensemble du dispositif permet donc de mesurer une intensité de l'ordre de  $10 \text{ pW.sr}^{-1}$ .

### 3.1.2 Mesure de la distribution angulaire

Le deuxième dispositif de détection nous permet de mesurer la distribution angulaire d'intensité du champ issu des structures. Il s'agit d'un goniomètre fabriqué au laboratoire, schématisé

<sup>30</sup>Dans une première version, on utilisait une photodiode montée en inverse sur un convertisseur courant/tension suivi par un étage d'amplification, circuit utilisé pour les asservissements des lasers. L'électronique de la détection synchrone étant bien meilleure, on a gagné un facteur huit sur le rapport signal/bruit en supprimant ces deux étages !

sur la figure 3.1.2.

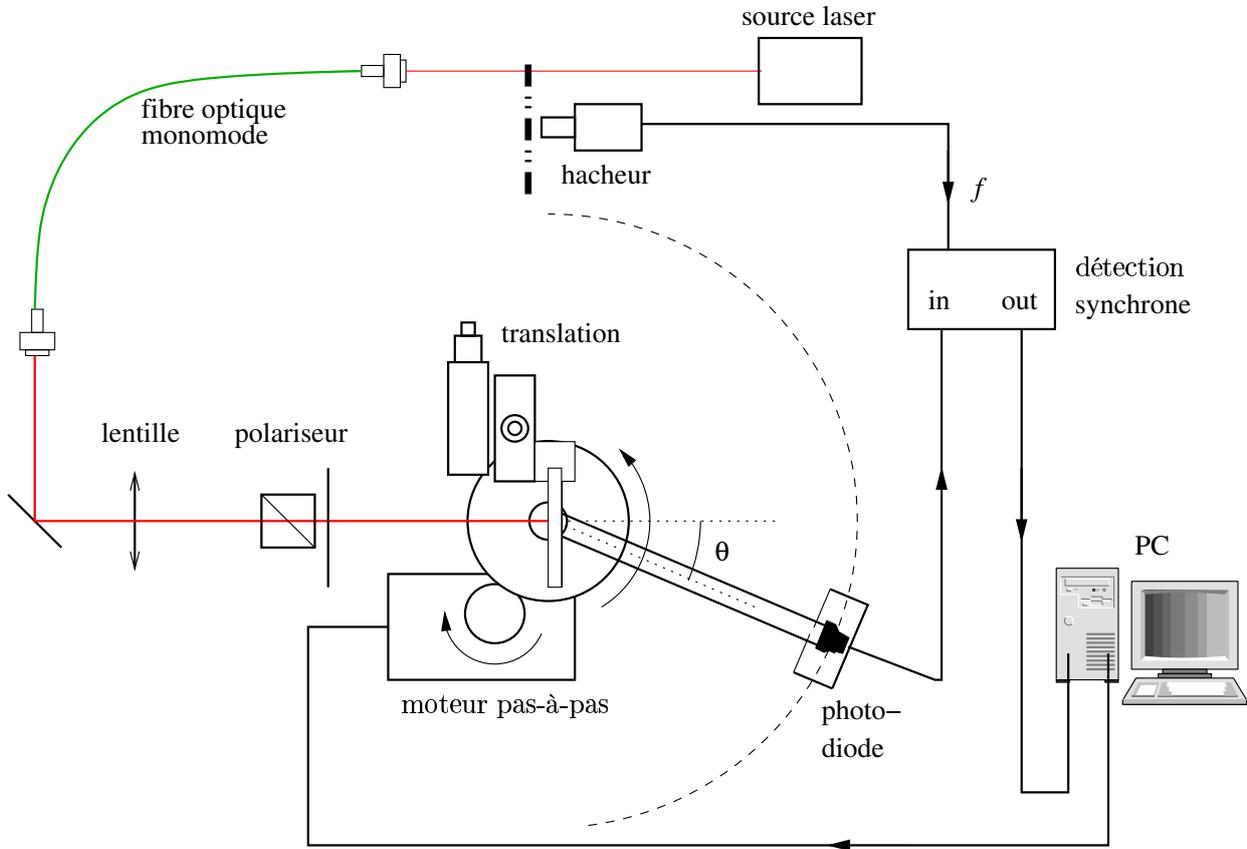


FIG. 3.2: Goniomètre

Le hacheur module l'intensité du faisceau à 850 Hz. Le capteur est la photodiode BPW34. Un programme LabView pilote une carte d'entrée/sortie (National Instrument PCI-6025E) qui commande le moteur pas-à-pas et enregistre la sortie de la détection synchrone. On utilise simplement le signal d'horloge de la carte, le front montant du signal commande le moteur et le front descendant la lecture de la sortie de la détection synchrone.

### 3.1.3 Étalonnage

Le bras de la photodiode fait  $z_d = 200$  mm de long, et on a placé devant le détecteur une fente de détection de 0,8 mm de large. La résolution angulaire est donc de 4 mrad. Un pas du moteur correspond d'autre part à une différence d'angle de  $2,01 \pm 0,02$  mrad. Avec un peu d'huile sur l'axe d'entraînement de la photodiode, on peut faire marcher l'ensemble avec une fréquence d'horloge de 8 Hz. Dans ce cas, on utilise une constante de temps de 100 ms pour la détection synchrone, la sensibilité étant typiquement de 100 pA, c'est à dire que 1 V en sortie

de la détection synchrone correspond à un photo-courant de 100 pA, soit une puissance détectée de 50 pW.

Tous les échantillons sont alignés de manière à ce que le faisceau d'excitation soit rétro-réfléchi – le critère d'une bonne rétro-réflexion est la ré-injection dans la fibre optique du faisceau réfléchi sur l'échantillon, l'erreur d'alignement est alors inférieure à  $10^{-4}$  radians. Pour chaque série de mesures, on enregistre le spectre angulaire du faisceau libre, qui donne l'axe optique. La platine de rotation est munie d'un vernier qui permet l'étalonnage angulaire du dispositif avec une précision de lecture de 5 minutes d'arc (0,9 mrad). Pour l'étalonnage angulaire, on a lu sur ce vernier l'angle parcouru par le détecteur après cent pas du moteurs, et pris la moyenne de cet angle sur cinq mesures.

### 3.1.4 Reproductibilité

On enregistre le spectre de diffraction d'un réseau micrométrique à deux reprises.

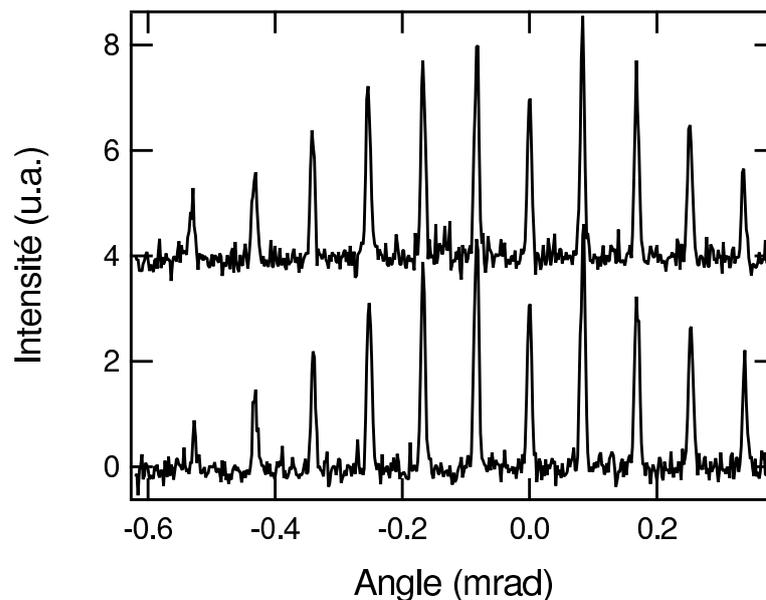


FIG. 3.3: Spectre angulaire d'un réseau micrométrique. Entre ces deux acquisitions, l'écart type de la différence de position des pics est de l'ordre de 1 mrad.

On mesure la position des pics de diffraction en ajustant une courbe gaussienne pour chacun d'entre eux. On calcule ensuite la différence de position de chaque pic entre les deux spectres. On obtient une valeur moyenne de cette différence de 1 mrad (erreur systématique), et un écart type de 1 mrad (reproductibilité). On vérifie aussi la bonne régularité des pas du goniomètre.

Malgré sa simplicité, les caractéristiques de cet instrument sont donc tout à fait satisfaisantes pour l'étude des spectres angulaires des ouvertures sub-longueur d'onde et le goniomètre permet une mesure complète de ces spectres sur un demi-cercle.

### 3.1.5 Alignements

Dans le cas de structures linéaires (fentes ou réseaux) il faut assurer l'orthogonalité de la structure par rapport au plan de rotation du détecteur (voir la figure 3.4).

La distribution verticale d'intensité d'une fente de longueur  $l$  est donnée dans l'approximation de Fraunhofer<sup>31</sup> par :

$$I(y, z_d, \theta) = I(0, z_d, \theta) \left( \frac{\sin w_y y}{w_y y} \right)^2 \quad \text{avec } w_y = \frac{\pi l}{\lambda z_d}$$

La distance entre les deux premiers nœuds de cette distribution,  $2y_0$  vaut  $2\lambda z_d/l \simeq 7$  mm. Soit  $\varphi$  l'angle entre le plan  $(x, z)$  et le plan de rotation du détecteur. Lorsque le détecteur tourne d'un angle  $\Delta\theta$ , il s'est déplacé d'une quantité  $\Delta y = z_d \frac{\Delta\theta}{2\pi} \sin \varphi$ . Pour pouvoir négliger la contribution de la variation de  $I$  selon  $y$ , on doit avoir  $\Delta y \ll y_0$ . Soit, pour  $\Delta\theta = \pi/2$ ,  $\varphi \ll 0,13$  rad ou  $7,5^\circ$ . L'alignement du plan d'émission et du plan du détecteur se fait ici encore à l'aide du réseau micrométrique, en s'assurant que tous les pics de diffraction – repérés avec une caméra de contrôle – sont à la même position sur le détecteur. Après alignement de l'échantillon, la déformation résiduelle est de l'ordre de 10 % de l'intensité maximale ( $\varphi \simeq 1^\circ$ ). On pourra corriger cet artefact par des méthodes de normalisation.

Les instruments étant décrits, nous pouvons présenter les différentes structures étudiées.

## 3.2 Œuil de bœuf

Il s'agit des motifs qui ont les premiers attiré notre attention : un trou central entouré par des sillons circulaires concentriques espacés périodiquement. On rappelle que lorsque les sillons sont placés à l'entrée du film – face au faisceau incident – le taux de transmission du trou est augmenté par rapport au même trou non-décoré. Si les sillons sont situés sur la face de sortie du film métallique – dos au faisceau incident – le champ laser transmis diverge très faiblement, par rapport au champ quasiment hémisphérique qu'émettrait un trou seul sans décoration.

La symétrie circulaire rendait difficile l'étude de ce type de structures par la méthode de microscopie de fluorescence. Le volume d'interaction et donc le signal de fluorescence, sont en effet cinq fois plus faibles pour ces structures que pour des fentes, qui nécessitaient déjà des temps de pose très longs. Nous avons donc employé le goniomètre décrit ci-dessus.

L'échantillon étudié était composé d'une série de 30 motifs, alternant des motifs gravés sur une face et des motifs gravés sur deux faces d'un film d'argent de 400 nm d'épaisseur. Pour toutes ces structures, le trou central faisait 150 nm de – soit moins que le diamètre de coupure (*cut off*) des modes guidés dans une ouverture, de l'ordre de  $0,3 \lambda$ , soit 260 nm à 852 nm. Comme pour les expériences de microscopie de fluorescence, les sillons étaient espacés de 830 nm et faisaient 415 nm de large, de manière à obtenir une contribution cohérente de tous les motifs.

Les structures gravées sur deux faces présentées dans l'article de H. Lezec [91] étaient fabriquées sur des membranes auto-suspendues comme celle utilisée dans nos expériences de

<sup>31</sup>On se situe à la limite du régime de Fraunhofer,  $\pi l^2/\lambda z_d \simeq 5 \cdot 10^{-2}$ . Cette approximation permet cependant d'obtenir un ordre de grandeur de l'échelle de variation d'intensité.

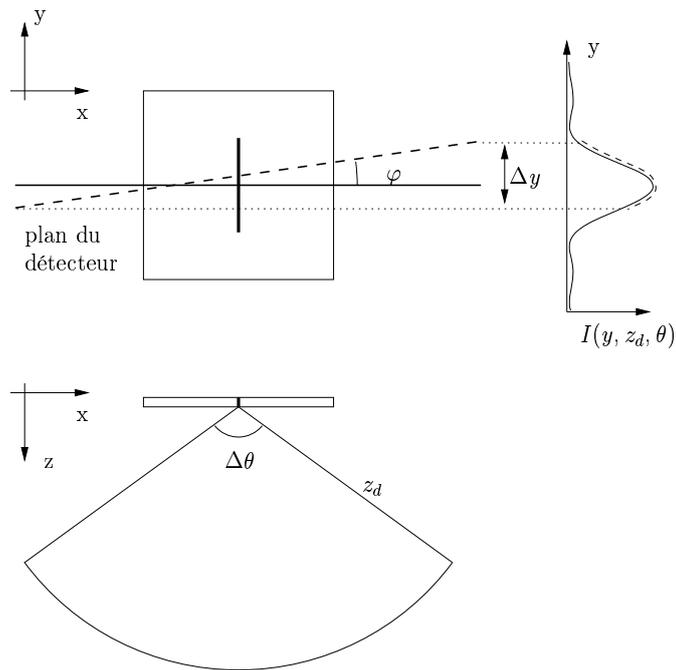


FIG. 3.4: Schéma d'un alignement imparfait entre le plan d'émission (trait plein) et le plan de rotation décrit par le détecteur (pointillés), résultant en une variation de l'intensité détectée (représentée à droite).  $z_d$  : distance entre la source et le détecteur. On corrige cette erreur en faisant pivoter l'échantillon dans le plan  $(x, y)$ .

lithographie (voir §I.4.4.1, p.73). Une structure similaire devait ici être fabriquée sur un substrat de verre, dans l'objectif de son intégration au piège magnéto-optique en miroir développé dans notre équipe, pour des expériences de piégeage d'atomes froids que nous évoquons en introduction de cette partie, p.83. Pour obtenir un motif sur les deux faces, on a d'abord gravé le substrat de verre, puis déposé l'argent sur ce substrat, pour enfin graver l'autre face. Les deux périodes (entrée et sortie) doivent être différentes pour tenir compte de la différence d'indice de l'interface (voir figure 3.5).

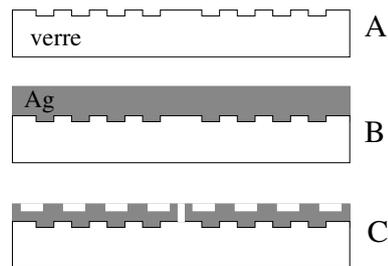
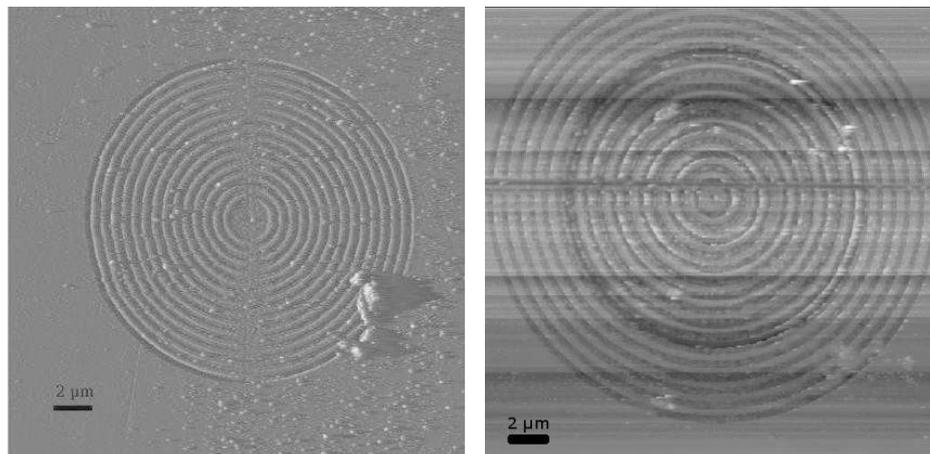


FIG. 3.5: Procédé de fabrication d'un œil de bœuf à deux faces. A : gravure du substrat de verre, B : dépôt du film d'argent, C : gravure du film d'argent.

Ce procédé de fabrication s'est avéré peu fiable. Sur l'ensemble de l'échantillon, seulement deux structures de chaque type ont pu être détectées, sans que la raison de l'absence de signal pour un grand nombre de structures ait pu être clairement établie. On peut cependant avancer quelques hypothèses.

Nous avons d'abord examiné ces structures au microscope à force atomique. Une image de chaque type d'éléments est donnée dans la figure 3.2.



(a) Image AFM d'un œil de bœuf à une face. Le diamètre de la structure fait 15  $\mu\text{m}$   
 (b) Image AFM d'un œil de bœuf à deux faces. Le diamètre vaut ici 22  $\mu\text{m}$

FIG. 3.6: Images au microscope à force atomique en mode contact des deux types de structures étudiées.

Comme on le voit sur l'image 3.6(b), la périodicité des sillons est fortement perturbée par

la présence des motifs sous-jacents dans le cas de l'ouverture à deux faces : sur cette image, on distingue deux zones concentriques :

- les six sillons les plus extérieurs sont très réguliers et aussi bien définis que ceux de la structure à une face (figure 3.6(a))
- mais en se rapprochant du centre, le motif devient très irrégulier. Le diamètre de cette région correspond à celui de la structure gravée à l'interface entre le verre et le métal, de période différente.

Ceci pourrait expliquer que nous n'ayons pas pu détecter la plus part des structures à deux faces, mais ne justifie pas le même problème rencontré avec les structures à une face.

Pour l'ensemble de ces structures, le diamètre du trou central était inférieur au diamètre de coupure des modes guidés ( $0,27 \lambda$ , soit 230 nm), le taux de transmission suit le régime de Bethe en  $(a/\lambda)^4$ , et le champ est évanescent selon l'axe du trou (voir [65, 64, 51, 63] et le paragraphe 1.1.3). Le taux de transmission du trou décroît donc de manière exponentielle en fonction de l'épaisseur du film, et comme la puissance quatrième de son diamètre. Cela rend ces ouvertures particulièrement sensibles aux défauts de fabrication, et pourrait expliquer nos difficultés.

Enfin, la présence de nombreuses sources parasites (*pinholes*) sur cet échantillon ont compliqué la détection des structures, en multipliant les artefacts. Ce genre de problème a progressivement disparu dans les échantillons étudiés par la suite, grâce à une meilleure maîtrise aussi bien du procédé de fabrication que des méthodes de détection.

Néanmoins, nous avons pu étudier les caractéristiques clés de certains de ces éléments.

### 3.2.1 Une face – distribution angulaire d'intensité

Les deux structures à une face donnant des résultats très similaires, nous ne présentons que les caractéristiques de l'une d'entre elles. Les structures sont positionnées avec le film d'argent face au détecteur.

La distribution angulaire d'intensité est obtenue à l'aide du dispositif décrit au paragraphe 3.1.2.

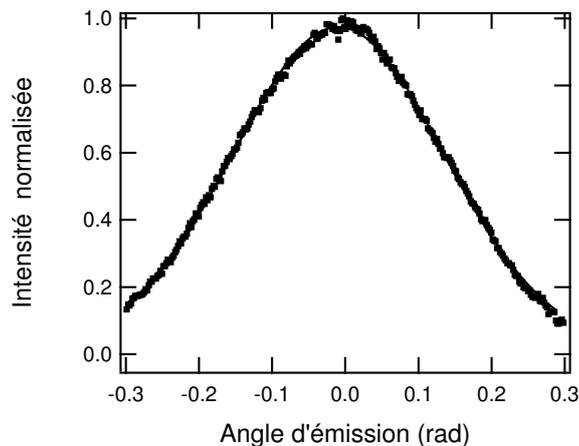


FIG. 3.7: Distribution angulaire d'intensité d'un œil de bœuf à une face. Le trou central de 150 nm de diamètre est entouré de 15 sillons concentriques espacés radialement de 830 nm et de 415 nm de large.

Un ajustement de cette courbe par une fonction gaussienne donne une pleine divergence angulaire à mi-hauteur de 175 mrad ( $10^\circ$ ). Un trou non décoré produirait un champ quasi-isotrope dans tout le demi-angle solide. Si on considère la diffraction d'un trou de diamètre égal au diamètre du sillon le plus excentré (soit  $D = 8,5 \mu\text{m}$ ), l'angle du premier nœud de la tâche d'Airy est donné par  $\sin \theta = 1,22 \lambda/D$ , soit  $\theta \simeq 70$  mrad. Le plein angle à mi-hauteur de cette figure de diffraction vaut 60 mrad. Cette valeur est sensiblement inférieure à celle mesurée ici et un plein angle à mi-hauteur de 175 mrad serait donné par une ouverture d'environ  $5 \mu\text{m}$  de diamètre. On ne peut donc pas considérer que l'ensemble des sillons se comportent comme des émetteurs. Nous verrons plus loin (§3.3.2) que l'une des raisons possibles de cette observation provient d'une mauvaise optimisation de la période d'espacement radial des sillons.

### 3.2.2 Structures à une face – Taux de transmission

La structure est éclairée avec un faisceau de diamètre  $w_0 = 270 \mu\text{m}$  en  $1/e^2$ , de puissance  $P_i = 31$  mW. On mesure une puissance transmise  $P_t = 2$  nW à l'aide du dispositif décrit au paragraphe 3.1.1. La puissance incidente sur un disque de rayon  $r$  pour un faisceau gaussien est donnée par la relation [98] :

$$P(r) = P_i \left[ 1 - \exp \left( -8 \frac{r^2}{w_0^2} \right) \right] \quad (3.1)$$

La puissance incidente sur la surface de l'ouverture, avec  $r_t = 75$  nm vaut donc  $P(r_t) = 6,2 \cdot 10^{-7} P_i = 19$  nW. Le taux de transmission en champ lointain normalisé par rapport à la surface du trou vaut donc environ 0,1.

On peut comparer ce taux de transmission à ceux que l'on peut estimer à partir des simulations numériques de F.J. García de Abajo [64] ou E. Popov *et al.* [65]. Selon la figure 3 de l'article de F. J. García de Abajo d'une part, le taux de transmission total<sup>32</sup> d'un trou de rayon  $r_t = 0,09\lambda$  est de l'ordre de  $2 \cdot 10^{-3}$  pour un film d'épaisseur  $0,8r_t$  pour un métal parfait. Dans notre cas, l'épaisseur vaut  $5,3r_t$ , et le taux de transmission diminue exponentiellement avec l'épaisseur du film, le taux de transmission dans notre cas devrait donc être de l'ordre de  $10^{-5}$ , soit une différence de 4 ordres de grandeur avec nos mesures.

Dans la figure 5 de l'article de E. Popov *et al.* [65] d'autre part, les auteurs donnent le taux de transmission total à  $\lambda = 500$  nm d'un trou de 75 nm de rayon en fonction de l'épaisseur du film, pour un métal réel. On peut estimer le taux de transmission de nos ouvertures en appliquant les facteurs d'échelles adéquats. Pour une épaisseur de 240 nm, le taux de transmission est de l'ordre de 0,1. En considérant une dépendance en  $(a/\lambda)^4$ , le taux de transmission d'un trou de 44 nm de rayon serait de l'ordre de 0,01, soit une différence d'un ordre de grandeur avec le taux de transmission dans le champ lointain mesuré. Ici encore, l'écart entre ces prédictions théoriques et l'expérience est difficile à justifier.

Mais, même si le taux de transmission est important comparé aux taux de transmission estimés ci-dessus, sa valeur reste faible. Si l'on souhaite par exemple utiliser des structures en réseau, plusieurs structures doivent être éclairées avec le même faisceau laser. Le taux de transmission que l'on souhaite connaître est alors le taux de transmission rapporté à la puissance incidente sur la surface totale de la structure, donc sur un disque de rayon  $r_s = 7,5 \mu\text{m}$ . Dans

<sup>32</sup>C'est-à-dire la puissance totale traversant une surface s'appuyant sur les bords du trou.

notre expérience, à partir de l'équation (3.1), la puissance incidente sur cette surface vaut 3,3 mW, le taux de transmission est donc avec cette définition de  $1,6 \cdot 10^{-6}$ . Pour réaliser un piège dipolaire, les intensités laser doivent être assez importantes. Pour obtenir un piège stable avec un faisceau de quelques microns de section transverse par exemple, la puissance nécessaire est de l'ordre de 100 mW, pour un désaccord de l'ordre de 1 nm. La perte d'un facteur  $10^6$  sur la puissance disponible est en ce sens prohibitive.

Mais l'effet de collection des structures à deux faces va permettre d'augmenter ce taux de transmission.

### 3.2.3 Structures à deux faces – distribution angulaire d'intensité

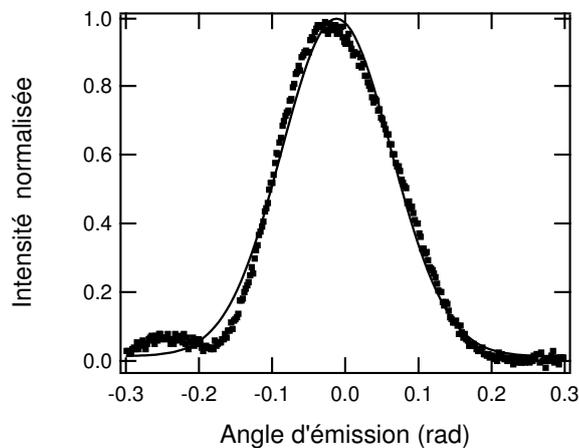


FIG. 3.8: Distribution angulaire d'intensité d'un œil de bœuf à deux faces.

La pleine divergence à mi-hauteur vaut ici 120 mrad ( $6.3^\circ$  – voir la figure 3.8). Le diamètre de la structure vaut  $22 \mu\text{m}$ , la pleine divergence de la tâche d'Airy correspondante vaudrait 40 mrad. Ici encore, la divergence observée est plus importante que la divergence d'un trou de même diamètre que la structure. Le diamètre d'un trou de même divergence vaudrait environ  $4,3 \mu\text{m}$ , comme pour les structures précédentes, cette différence peut s'expliquer par une mauvaise optimisation de la période des sillons.

### 3.2.4 Structures à deux faces – Taux de transmission

On mesure ici un taux de transmission rapporté à la taille du trou de 1,6. Le gain de transmission est d'un facteur 16 par rapport à l'œil de bœuf mono-face, et l'effet de collection permet effectivement de "récupérer" de la puissance à l'extérieur du trou. Cependant, éclairé par un faisceau laser de  $15 \mu\text{m}$  de diamètre en  $1/e^2$ , ce taux de transmission ne vaut plus que  $2,6 \cdot 10^{-5}$ . Cette valeur est encore trop faible pour l'emploi de ces éléments en tant que sources de pièges dipolaires.

Les études ultérieures ont montré que la période de 830 nm employée pour dessiner ces structures n'était pas exactement accordée à la période de l'onde de surface. La correction de ce désaccord devrait permettre d'augmenter le taux de transmission. On a vu aussi que la

fabrication avec cette méthode n'était pas fiable. Si on veut employer ce type de structures en conjonction avec des atomes, il faudra donc sans doute employer des membranes métalliques auto-suspendues. Dans ce cas en effet, la période radiale des sillons est la même de chaque côté du film, ce qui devrait régler le problème de la déformation du réseau.

Les taux de transmission mesurés ici restent cependant faibles et le nombre de structures défectueuses important. Avant de poursuivre notre recherche d'une structure mieux adaptée à la génération de potentiels dipolaires pour les atomes, il nous a paru nécessaire de mieux comprendre les mécanismes de transmission de la lumière par des ouvertures sub-longueur d'onde dans des films métalliques. Nous avons entrepris d'étudier systématiquement des ouvertures de symétrie linéaire, de géométrie de plus en plus simple.

## 3.3 Fentes entourées de sillons périodiques

### 3.3.1 Introduction

Nous avons déjà étudié de tels échantillons dans le chapitre précédent, et montré que la divergence du diagramme d'émission de ces objets était inversement proportionnelle au nombre de sillons adjacents à l'ouverture. On a interprété cette loi en considérant que toute la structure émettait un champ propagatif dans le milieu 3. Autrement dit, chaque motif de la structure est une source secondaire de champ radiatif, à partir du champ guidé à travers la fente.

Pour comprendre ce processus de collimation de la lumière, on a cherché à caractériser l'interaction entre le champ issu de l'ouverture sub-longueur d'onde et les sillons. Comme nous l'avons vu dans la section 1.3.1, ces sillons produisent deux effets selon qu'ils sont placés en face de sortie (dos au laser d'excitation) ou en face d'entrée (face au laser d'excitation).

- En face de sortie, les sillons se comportent comme des sources secondaires de champ radiatif, par diffraction du champ de surface créé par la fente.
- En face d'entrée, les sillons diffractent le champ incident. Cette diffraction produit un champ de surface qui interfère avec le champ à l'entrée de la fente.

Dans cette description, la réponse de la structure dépend de la distance entre la fente et les sillons, qui détermine l'amplitude du champ de surface, issu de la fente dans le premier cas, et du sillon dans le deuxième. On a donc étudié la réponse optique de ces structures en fonction de la distance entre la fente et les sillons, pour obtenir des informations sur cette étape de propagation.

Les échantillons étudiés sont composés d'une fente de  $150 \text{ nm} \times 100 \text{ }\mu\text{m}$  et de deux groupes de cinq sillons espacés périodiquement ( $d = 830 \text{ nm}$ ,  $b = 415 \text{ nm}$ ,  $h = 150 \text{ nm}$ ). La période de  $830 \text{ nm}$  a été choisie pour obtenir un effet de collimation à  $852 \text{ nm}$ , d'après les mesures expérimentales déjà réalisées dans l'équipe de T. Ebbesen. Cette période est interprétée comme la longueur d'onde effective du champ évanescent à l'interface, *i.e.*  $\lambda_s = \lambda/n_s$ , où  $n_s = 852/830 = 1.027$  est l'indice effectif.

Dans le cadre du modèle de H. Lezec [37], ce champ de surface s'écrit, pour  $x > a/2$  :

$$E_s e^{i\omega t} = -\frac{E_i a}{\pi x} \cos\left(k_s x + \frac{\pi}{2}\right) e^{i\omega t} \quad \text{pour } |x| > a/2 \quad (3.2)$$

On a une distribution d'amplitude stationnaire à la surface dont les maxima d'intensité sont espacés de multiples entiers de  $\lambda_s$ , le premier maximum étant situé à trois quarts de période,

et non pas une période, du centre de la fente. Pour tester la validité de ce modèle, on étudie deux séries de motifs. Pour la première, on place les sillons à des multiples entiers de la période employée (sillons non-décalés, ou *unjogged*), et pour la deuxième ces sillons sont décalés d'un quart de période vers la fente, la distance étant toujours incremented d'un nombre entier de périodes (sillons décalés, ou *jogged*) (voir la figure 3.9).

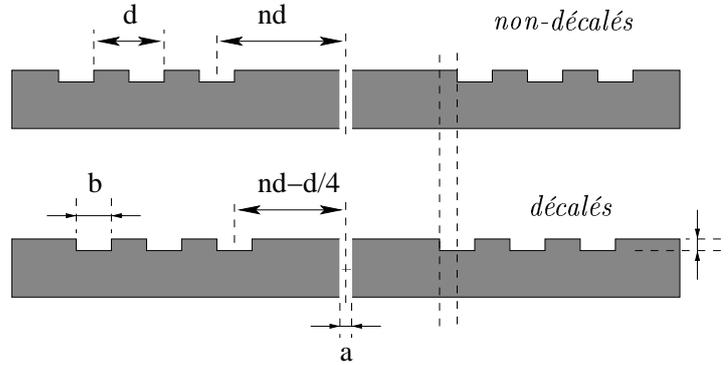


FIG. 3.9: Sillons latéraux non-décalés et décalés

Voyons maintenant les résultats obtenus en face d'entrée.

### 3.3.2 Décorations en face d'entrée

On mesure l'intensité transmise par ces structures, en mettant les sillons face au laser d'excitation.

On obtient le graphique de la figure 3.10. On peut tirer plusieurs enseignements de cette mesure.

- Les courbes des séries décalées et non-décalées sont anti-corrélées. Leur coefficient de corrélation vaut -0,74.
- Pour des distances inférieures à 20  $\mu\text{m}$ , l'intensité transmise par les structures décalées est supérieure à celle des structures non-décalées
- Un effet de collection persiste à des distances importantes de la fente

Dans le cadre du modèle CDEW, les deux séries sont naturellement anti-corrélées dans la mesure où les groupes de sillons sont par construction décalés spatialement de  $\lambda_s/4$ . Ainsi, lorsque les sillons d'une structure décalée sont sur un maximum de champ, les sillons de la structure non-décalée correspondante sont sur un minimum de champ.

À des distances supérieures à 20  $\mu\text{m}$  cependant, les deux séries se croisent. À partir de ces seules mesures, on peut attribuer deux origines à ce phénomène : une mauvaise évaluation de  $n_s$ , ou un mauvais étalonnage de la distance lors de la fabrication des structures. Ces deux erreurs entraînent un désaccord entre l'incrément  $d$  et la longueur d'onde effective  $\lambda_s$  sur la surface, et un décalage progressif des sillons par rapport au champ. Par exemple, si l'écart entre  $\lambda_s$  et  $d$  est de 2%, la structure de  $n = 25$  sera décalée d'une demi période par rapport à la première structure de la série. Les données présentées ici ne permettent pas de distinguer entre ces hypothèses.

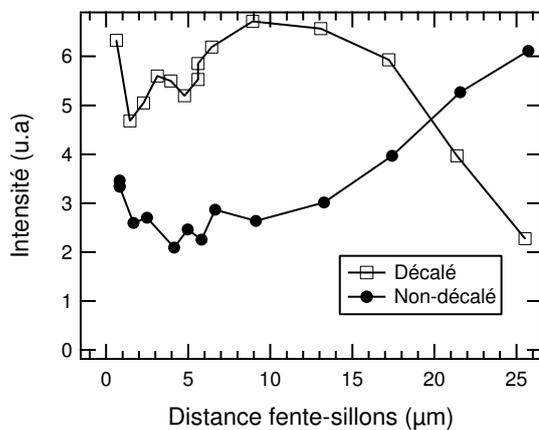


FIG. 3.10: Intensité transmise en face d'entrée en fonction de la distance fente-sillons

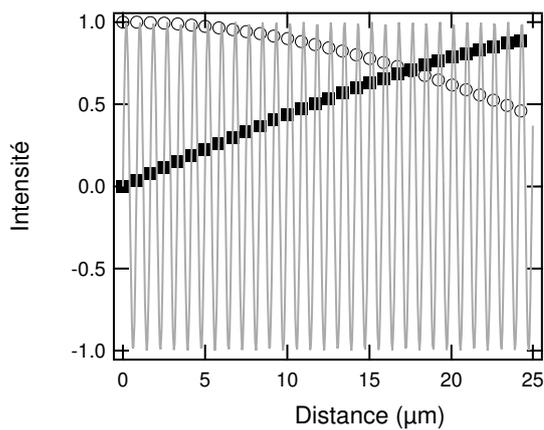


FIG. 3.11: Effet simulé d'un désaccord entre  $d$  et  $\lambda_s$ , reproduisant qualitativement l'effet observé dans la mesure de l'intensité transmise.

La persistance d'un effet de collection à de grandes distances de la fente est en contradiction avec les prédictions du modèle CDEW tel qu'il est présenté dans l'article de H. Lezec et T. Thio [37], et qui prévoit une décroissance rapide de l'amplitude du champ de surface (équation (3.2)). À l'examen de ces résultats, la description en terme de couplage du champ diffracté par la fente à un plasmon polariton de surface pourrait sembler mieux adaptée [61]. On sait en effet que la longueur d'atténuation d'un plasmon polariton de surface est de l'ordre de quelques dizaines de micromètres, et la distance maximale étudiée ici vaut  $23,2 \mu\text{m}$ . On verra par la suite que les spectres angulaires mesurés en face de sortie nous conduiront à considérer un mode guidé s'atténuant lentement à la surface, sans qu'il corresponde exactement au plasmon polariton de surface tel qu'il est défini par H. Raether [47].

### 3.3.3 Face de sortie

Les décorations sont placées en face du détecteur. On étudie le spectre angulaire produit avec le dispositif décrit à la section 3.1.2.

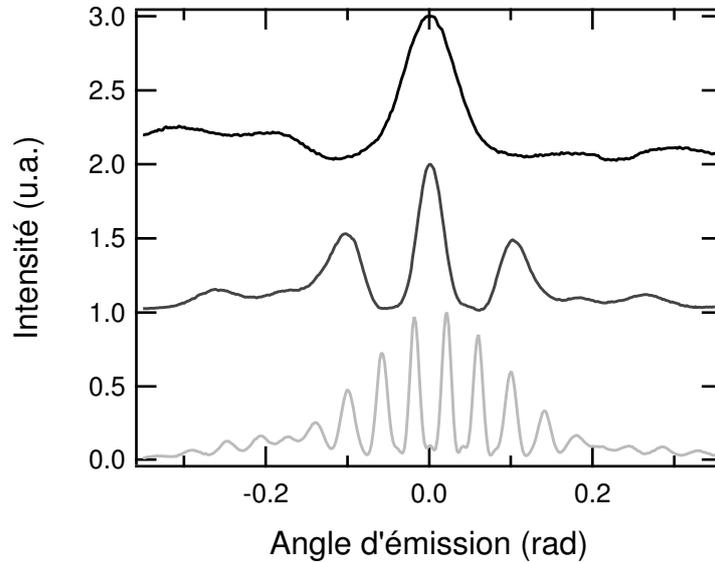


FIG. 3.12: Spectres angulaires de quelques structures fente + 5 sillons décalés. De haut en bas :  $n = 3$ ,  $n = 7$ ,  $n = 21$ .

Sur la figure 3.12, on voit que les spectres angulaires mesurés ont une enveloppe commune modulée à une fréquence angulaire qui augmente en fonction de la distance fente-sillons. La comparaison à même distance (à  $210 \text{ nm}$  près) des figures de diffraction des réseaux décalés et non-décalés (figure 3.13) montre que l'intensité du spectre "décalé" est plus importante, et qu'il y a deux fois plus de franges brillantes dans le cas non-décalé. La présence d'une figure d'interférence pour les sillons non-décalés, même à faible distance, ne peut pas s'expliquer en considérant un champ de surface stationnaire. Selon l'équation (3.2), le champ évanescents est en effet nul à des distances de  $n\lambda_s$  de la fente, il ne devrait donc pas y avoir de champ issus des sillons pour les structures décalées, et on devrait voir seulement le champ émis par la fente. Comme nous le verrons plus en détail par la suite, on ne peut rendre compte des résultats observés qu'en considérant un mode guidé *propagatif* à la surface. Cela revient à considérer

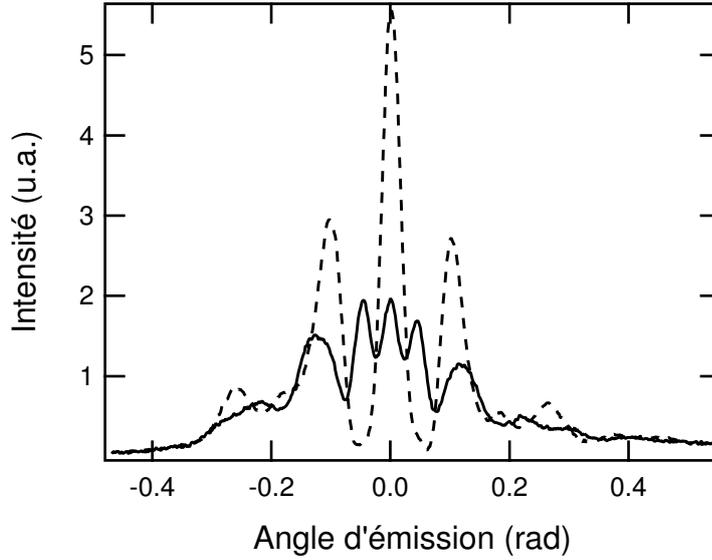


FIG. 3.13: Spectres angulaires des structures non-décalées (trait plein) et décalées (pointillés) pour  $n = 7$ . La distance entre le fente et le premier sillon vaut 5,60 et 5,81  $\mu\text{m}$  pour les sillons décalés et non-décalés, respectivement

que le champ ne s'écrit pas sous la forme  $E_s \cos(k_s x + \phi) \exp(-i\omega t)$ , mais plutôt sous la forme  $E_s \cos(\pm k_s x + \phi - \omega t)$ .<sup>33</sup> Nous allons maintenant développer cette hypothèse et examiner ses conséquences.

Pour interpréter les spectres observés, on se donne un cadre formel simple : au lieu de considérer un champ évanescent dont l'amplitude varie à la surface comme un sinus cardinal, nous ne faisons pas d'hypothèse sur son comportement. Comme dans le modèle CDEW, chaque motif est considéré comme la source secondaire ponctuelle d'un champ homogène dans le milieu 3 et d'un champ évanescent à l'interface air/métal. On suppose par contre que le champ de surface peut être décrit comme un champ évanescent propagatif à l'interface avec un vecteur d'onde effectif  $k_s = n_s k_0$ , et dont l'amplitude dépend de la distance à la source :

$$E_s(x) = E_s^0 f(|x|) \exp i(-k_s x + \phi - \omega t) \text{ pour } x < 0 \quad (3.3)$$

$$E_s(x) = E_s^0 f(|x|) \exp i(k_s x + \phi - \omega t) \text{ pour } x > 0 \quad (3.4)$$

où  $f(x)$  décrit la variation d'amplitude du champ.

Soulignons que cette expression diffère qualitativement de l'équation 3.2 du modèle CDEW et ne peut pas être dérivée du calcul donné par M. Kowarz [52], dans lequel le champ total est nul à la surface. Cette description phénoménologique nous permettra cependant de décrire les résultats obtenus par la suite.

Pour les champs radiatifs, dans le cas non-décalé par exemple, on considère la fente et chaque sillon comme les sources d'une onde cylindrique, l'intensité détectée à un angle  $\theta$  donné résultant de l'interférence de ces champs. Le champ issu de la fente est noté  $E_f$ , et les champs issus des sillons sont notés  $E'_j$  et  $E_j$  pour les sillons de  $x < 0$  et de  $x > 0$  respectivement.

<sup>33</sup>La dépendance en temps n'est pas explicite dans l'article de H. Lezec et T. Thio [37], mais M. Kowarz indique dans son article [52] que la composante temporelle est factorisée au début du calcul

Le champ total issu des sillons du côté  $x > 0$ ,  $E_r$  s'écrit :

$$E_r = \sum_{j=0}^4 E_j e^{i\phi_j} \quad (3.5)$$

Pour une structure donnée, les champs issus de chaque sillon sont supposés avoir tous la même amplitude, proportionnelle à l'amplitude du champ de surface issu de la fente au niveau du premier sillon,  $E_j = \beta E_s^0 f(x_0)$  et on considère que la phase  $\phi_j(\theta)$  peut s'écrire comme une somme de trois termes :

- Un retard de phase intrinsèque  $\phi_i$  par rapport au champ émis par la fente, identique pour toutes les sources.
- Un retard de phase  $\phi_{sj}$  dû à la propagation du champ évanescent avant qu'il soit diffracté par le sillon, proportionnel à la distance entre la fente et le sillon :

$$\phi_{sj} = n_s 2\pi x_j / \lambda$$

- La phase associée à la propagation dans l'espace libre (voir la figure 3.14) par rapport au champ issu de la fente dans la même direction :

$$\phi_{lj} = -2\pi x_j \sin \theta / \lambda$$

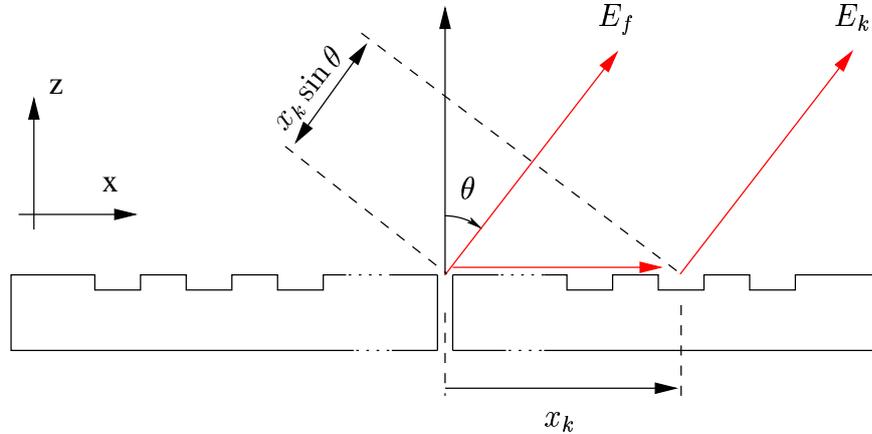


FIG. 3.14: Interférence entre les champs issus de la fente et du sillon k

Ainsi, avec  $x_j = (n + j)d$  pour les sillons non-décalés, on a :

$$\phi_j = \phi_i + \frac{2\pi d}{\lambda} (n_s - \sin \theta)(n + j) = \phi_i + \phi_{s0} + \phi_{t0} + jq \quad (3.6)$$

avec :

$$q = \frac{2\pi d}{\lambda} (n_s - \sin \theta)$$

Et de même, pour le côté  $x < 0$

$$\phi'_j = \phi_i + \frac{2\pi d}{\lambda}(n_s + \sin \theta)(n + j) \quad (3.7)$$

En normalisant les champs issus des sillons par rapport au champ radiatif issu de la fente, l'équation 3.5 peut alors s'écrire :

$$E_r = \eta E_f \exp(i(\phi_i + \phi_{s0} + \phi_{i0})) \sum_{j=0}^{N-1} e^{iqj} \quad (3.8)$$

avec  $\eta = \beta E_s^0 f(x_0)/E_f$

$$= \eta E_f e^{i\phi_0} \frac{e^{iqN} - 1}{e^{iq} - 1} \quad (3.9)$$

$$= \eta E_f e^{i\phi_0} \exp\left(iq \frac{N-1}{2}\right) \frac{\sin(qN/2)}{\sin(q/2)} \quad (3.10)$$

De même pour les sillons de  $x < 0$  :

$$E'_r = \eta E_f e^{i\phi_0} \exp\left(iq' \frac{N-1}{2}\right) \frac{\sin(q'N/2)}{\sin(q'/2)} \quad (3.11)$$

Le champ total étant la somme de ces deux termes et du champ directement émis par la fente :

$$E_{total} = E_f + E_r + E'_r \quad (3.12)$$

La distribution angulaire d'intensité s'écrit alors  $I_{total}(\theta) \propto E_{total} E_{total}^*$ . Nous avons tracé le champ total calculé avec cette expression pour des structures de mêmes géométries que les exemples donnés dans les figures 3.12 et 3.13. Les courbes obtenues sont superposées aux spectres expérimentaux dans la figure 3.3.3.

Trois paramètres ont été ajustés "manuellement" pour obtenir un accord qualitatif avec les mesures<sup>34</sup> :

- l'intensité sur l'axe optique.
- le paramètre  $\eta$ , c'est-à-dire le rapport des amplitudes du champ directement transmis par la fente et du champ diffracté par un sillon,
- et le retard de phase intrinsèque  $\phi_i$  associé aux champs émis par les sillons.

De plus, la distance entre la fente et le premier sillon prend dans tous les cas sa valeur nominale, soit  $nd$ , identique pour les structures décalées et non-décalées. L'intensité sur l'axe optique a été normalisée pour chaque spectre expérimental et on a fixé  $\eta = 0,15$  pour toutes les courbes présentées, ce qui revient à considérer le  $f(x_0)$  comme constant pour les distances fente-sillons étudiées. Cette hypothèse est compatible avec l'observation de la persistance d'un effet de collection à grande distance avec les sillons placés en face d'entrée.

Enfin, pour reproduire le comportement des structures décalées, nous avons pris  $\phi_0 = i$ , et  $\phi_i = \pi/2$  pour les structures non-décalées.<sup>35</sup> Le décalage du groupe de sillon permettrait

<sup>34</sup>Le désaccord important sur les ailes de la distribution peut provenir d'un mauvais alignement du goniomètre, comme décrit au §3.1.5.

<sup>35</sup> On peut d'ailleurs remarquer que les structures non-décalées sont effectivement en quadrature avec le champ directement transmis par la fente : l'intensité modulée due aux interférences entre les deux groupes de sillons s'ajoute à la distribution d'intensité constante provenant de la fente.

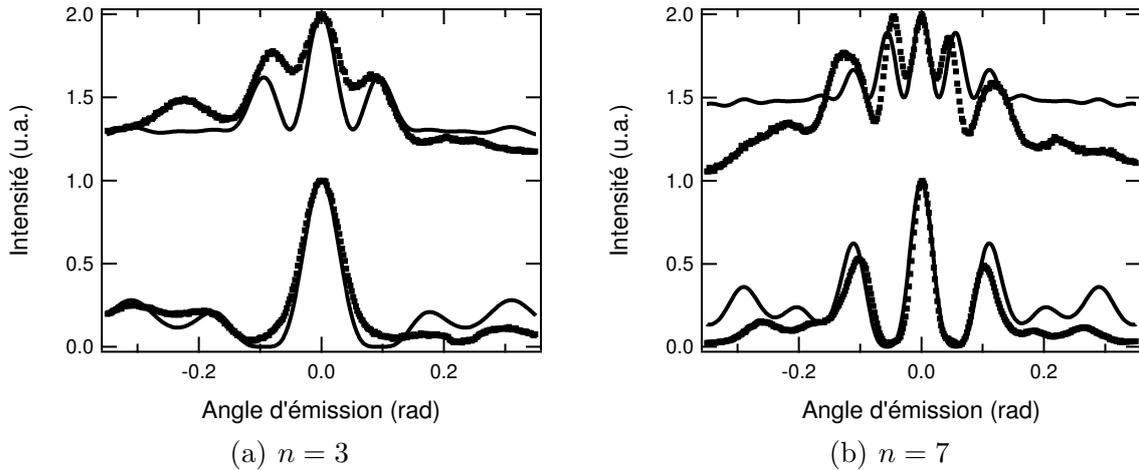


FIG. 3.15: Simulation (traits pleins) et spectres expérimentaux (points) du diagramme d'émission de fentes uniques entourées de 5 sillons périodiques espacées de  $n$  périodes par rapport à la fente centrale. Les courbes du haut correspondent à la structure non-décalée et celles du bas à la structure décalée

donc de compenser un décalage de phase intrinsèque de  $\pi/2$ . Ici encore cette observation et les mesures en face d'entrée à courte distance sont concordantes : l'effet de collection est maximal avec les sillons décalés, pour lesquels on aurait un effet d'interférences constructives.

Cependant, lorsque la distance fente-sillons augmente, l'accord entre les simulations et les spectres expérimentaux se dégrade.

Sur la figure 3.16, on constate que pour  $n=20$ , le spectre expérimental est en opposition de phase avec le spectre simulé avec les mêmes hypothèses que précédemment sur la phase intrinsèque ( $\phi_i = \pi/2$ ). Cette observation est en accord avec l'observation du croisement des séries de mesures de l'intensité transmise par les structures décalées et non-décalées en face d'entrée. D'autre part, nous avons conservé dans cette simulation le même  $\eta$  que pour les faibles distances, soit 0,15, et on peut constater que les visibilités des franges centrales du spectre expérimental et de la simulation sont voisines (elles valent respectivement 0,8 et 0,9), l'amplitude relative du champ diffracté par les sillons, supposée proportionnelle à l'amplitude du champ de surface évanescent créé par la fente, est donc presque constante sur des distances allant de 0,7 à 25  $\mu\text{m}$ .

### 3.3.4 Conclusion

Les résultats peu satisfaisants des premières mesures présentées, sur les structures de types œil de bœuf, nous ont amenés à étudier plus systématiquement les propriétés des ouvertures sub-longueur d'onde décorées. La description du champ évanescent donnée dans le modèle CDEW n'est pas compatible avec tous ces résultats.

Cependant, une description interférentielle plus générale a permis de rendre compte qualitativement de la distribution angulaire d'intensité dans le champ lointains. Comme dans le modèle de H. Lezec et T. Thio, on décrit chaque motif comme une source de champ radiatif et évanescent. Les champs radiatifs sont considérés comme angulairement isotropes, et les champs

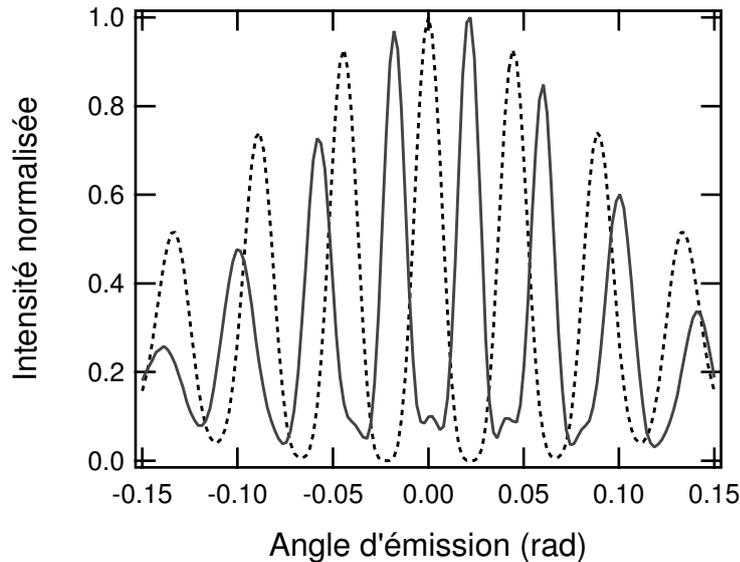


FIG. 3.16: Spectre expérimental (trait plein) et simulation (pointillés) pour la structure  $n=20$ , sillons décalés.

évanescents comme des champs propagatifs – contrairement au modèle CDEW pour lequel le champ évanescent est stationnaire – confinés à l’interface, dont on ne cherche pas à décrire *a priori* le comportement spatial.

Cette description permet de reproduire qualitativement les résultats observés pour des distances fente-sillon inférieures à quelques micromètres, avec les hypothèses supplémentaires données au paragraphe 3.3.3. À plus grande distance, les mesures sont moins bien décrites par le modèle en conservant la distance fente-sillon nominale. On a vu que ce désaccord pouvait provenir d’un écart entre l’incrément de distance et  $\lambda_s$  ou d’une erreur d’étalonnage du FIB. À partir du modèle décrit ci-dessus, on pourrait essayer de reproduire tous les spectres observés en ajustant la distance fente-sillon ou  $n_s$  pour chaque spectre. Cependant, la fonction à ajuster est très sensible à ce dernier paramètre et la convergence de la procédure d’ajustement est mauvaise. D’autre part, l’incrément de distance entre deux échantillons successifs est trop important pour caractériser correctement l’évolution des grandeurs observées.

Pour étudier les propriétés du champ de surface, une nouvelle série d’échantillons a donc été réalisée, permettant une meilleure analyse des phénomènes observés. Nous avons d’une part simplifié notablement la géométrie des structures : on étudie des motifs constitués d’un sillon unique, ou de deux sillons symétriques, ce qui permet une analyse beaucoup plus directe des spectres mesurés. D’autre part, l’incrément de distance fente-sillon a été largement diminué, de manière à échantillonner correctement les variations de la phase et de l’intensité transmise par les sillons.

# Chapitre 4

## Ouvertures décorées par des motifs uniques

### 4.1 Introduction

Les expériences menées sur des motifs périodiques nous ont conduit à considérer un modèle interférentiel simple, permettant d'obtenir une description qualitative du comportement en champ lointain. La distribution angulaire d'intensité est correctement reproduite en décrivant l'ensemble des motifs (fente et sillons) comme des sources ponctuelles. Le champ émis par un sillon possède un retard de phase par rapport au champ homogène dû à la propagation du champ de surface entre la fente source et ce sillon. Mais l'échantillonnage de la distance entre les motifs employés dans les structures précédentes ne permettait pas de résoudre correctement les variations de ce retard de phase, dont la période est de l'ordre de la longueur d'onde.

Pour obtenir des informations plus claires sur le comportement du champ de surface, nous nous sommes orientés vers des séries d'échantillons plus simples, de manière à limiter le nombre de paramètres en jeu et à faciliter l'interprétation de leurs influences respectives. Nous avons donc étudié des structures comportant une fente et un sillon de chaque côté puis d'un seul côté de l'ouverture. L'incrément de distance entre la fente et le sillon a été réduit à 103 nm, soit environ un huitième de la longueur d'onde. Nous verrons que l'on peut alors déduire des figures d'interférences observées les propriétés du champ de surface en modifiant systématiquement les paramètres géométriques des structures.

Après une description des échantillons étudiés, nous détaillerons le cadre formel permettant d'interpréter les spectres observés, esquissé dans le chapitre précédent. Nous présenterons alors les résultats obtenus en face d'entrée et de sortie pour les différentes géométries et nous en déduirons certaines propriétés de la diffraction du champ de surface par les sillons : les variations du retard de phase intrinsèque et de l'amplitude du champ diffracté en fonction de la géométrie sont présentées. Ces résultats ont fait l'objet de deux publications.<sup>36</sup>

---

<sup>36</sup>G. Gay, O. Alloschery, B. Viaris de Lesegno, C. O'Dwyer, J. Weiner et H. J. Lezec. "The optical response of nanostructured surfaces and the composite diffracted evanescent wave model". *Nat. Phys.*, 2 :262 – 267,2006 et G. Gay, O. Alloschery, B. Viaris de Lesegno, J. Weiner et H. J. Lezec. "Surface wave generation and propagation on metallic subwavelength structures measured by far-field interferometry". *Phys. Rev. Lett*, 96 : 213901,2006.

## 4.2 Échantillons étudiés

Le mode de fabrication de ces échantillons a été décrit plus haut (voir 2.4.1). La résolution spatiale du procédé de fabrication est limitée par la résolution de l'imagerie par microscopie électronique à balayage intégrée au faisceau d'ion focalisé (*Focused Ion Beam*, FIB). La position du FIB est en effet donnée par ces images. Donc, si l'on veut par exemple réaliser une structure comportant deux motifs espacés de  $20\ \mu\text{m}$ , le champ de vue du microscope doit être supérieur à  $20\ \mu\text{m}$ . Le faisceau d'ion est positionné au pixel près et chaque image comporte  $2048 \times 2048$  pixels. Pour un champ de  $22\ \mu\text{m}$ , la résolution spatiale vaut donc  $22/2048 = 1,07 \cdot 10^{-2}\ \mu\text{m}$ , soit environ  $10\ \text{nm}$ . Pour avoir une résolution suffisamment grande par rapport à la longueur d'onde, la grande dimension des ouvertures étudiées a donc été limitée à  $20\ \mu\text{m}$ , et l'excursion en distance fente-sillon à  $6\ \mu\text{m}$ .

Chaque échantillon est constitué d'une matrice de structures gravées sur la surface d'argent, comprenant 9 colonnes espacées de  $1,5\ \text{mm}$  selon  $x$  et 7 lignes espacées  $2\ \text{mm}$  selon  $y$ , soit en tout 63 structures. Parmi ces structures, une colonne est constituée uniquement de fentes non décorées nominalement identiques. Ces sept structures nous permettent d'une part d'estimer la variabilité du taux de transmission et sont d'autre part utilisées pour normaliser les mesures effectuées avec les fentes décorées. Les autres structures correspondent au motif à étudier et pour lequel la distance fente-sillon est systématiquement incrémentée. La figure 4.2 montre un exemple de cartographie d'un échantillon.

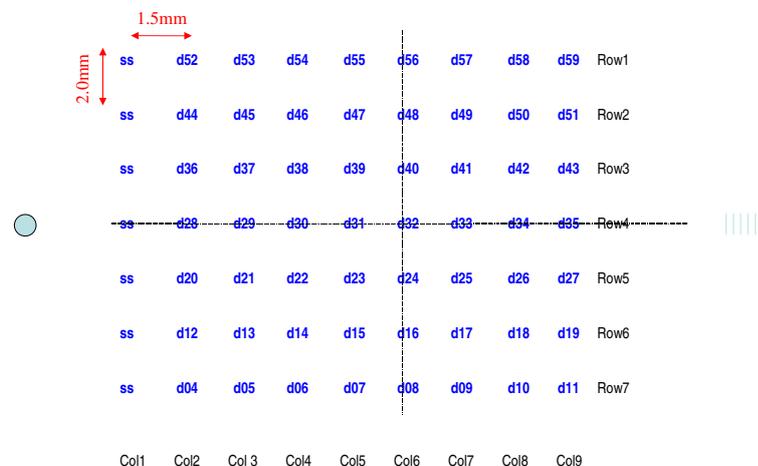


FIG. 4.1: Exemple de cartographie d'une plaque d'échantillons. Les différents sigles indiquent les caractéristiques de la structure à la position indiquée :  $ssn \equiv$  ouverture non-décorée,  $dn \equiv$  ouverture décorée, le chiffre  $n$  indique la distance centre-à-centre entre l'ouverture et le motif. Au centre à gauche : trou de centrage de  $10\ \mu\text{m}$ , au centre à droite : réseau microscopique d'alignement. La carte est vue du côté métallique.

Nous avons cherché la géométrie la mieux adaptée à la caractérisation du champ de surface, ce qui nous a amenés à diminuer le nombre de sillons par structure, puis l'incrément de distance fente-sillon d'une structure à l'autre. Les structures les plus simples ont ensuite permis d'obtenir une information quantitative sur l'amplitude et la phase relatives du champ radiatif diffracté

par le sillon, par rapport au champ diffracté par la fente. Nous avons enfin fait varier les paramètres géométriques du sillon, pour pouvoir déterminer leur influence sur le comportement du système. En plus de ces structures composées d'une fente et d'un sillon, nous avons mesuré, comme nous le verrons plus loin (§4.4), les caractéristiques d'une série de doublets composés d'un *trou* de section circulaire de 300 nm de diamètre et d'un sillon de 100 nm de large et 70 nm de profondeur.

Le tableau 4.2 récapitule l'ensemble des échantillons étudiés.

Label	Largeur (nm)	Profondeur (nm)	Distance maximale ( $\mu\text{m}$ )	Pas (nm)	nombre de sillons
VIIIa	415	100	80	830	2
VIIIb	415	100	80	830	2
VIIIc	415	100	80	830	1
VIII d	415	100	80	830	1
Xa	100	100	6	103	2
Xb	415	100	6	103	2
Xd	100	100	6	103	1
XIIIa à XIIIh	100	32 à 256	3,5	103	1
XIVa à XIVg	415	32 à 256	3,5	103	1
XVI	trou + sillon, $a = 300$ nm $b = 100$ nm, $h = 70$ nm			103	1

TAB. 4.1: Tableaux récapitulatif des échantillons étudiés.

Les structures comportant deux sillons donnent des résultats concordant avec les mesures effectuées sur des structures comportant un seul sillon. Pour simplifier la discussion, nous ne présenterons pas les résultats obtenus pour les structures symétriques.

## 4.3 Expression des figures d'interférences

Dans le chapitre précédent, nous avons donné un modèle permettant de reproduire les spectres angulaires observé. Nous reprenons ici cette description avec un peu plus de détails. Le modèle présenté a simplement pour but de clarifier la discussion des résultats observés et ne prétend pas être une description théorique rigoureuse de la réponse optique des structures considérées.

### 4.3.1 Définitions

On considère dans tout ce chapitre des champs scalaires  $E(x,z)e^{i(\mathbf{k}\mathbf{r}-\omega t)}$ .

Le champ incident est noté  $E_i$ . On travaille toujours avec un champ polarisé TM. Dans la mesure où la largeur en  $1/e^2$  est grande devant la taille des structures (300  $\mu\text{m}$  contre quelques  $\mu\text{m}$ ), on peut considérer le champ incident comme une onde plane.

Le champ associé à la fente se décompose en cinq termes :

- le champ radiatif diffusé dans le verre (milieu 1),  $E_{f1}$
- le champ de surface à l'interface air/métal,  $E_{fs3}$

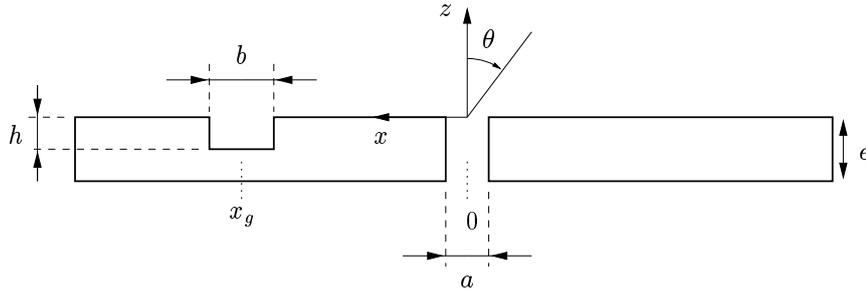


FIG. 4.2: Définition des grandeurs géométriques d'un doublet fente-sillon. Dans tout ce qui suit, le sillon est placé à gauche de la fente, et les angles sont donnés avec l'orientation de  $\theta$  donnée sur ce schéma.

- le champ à l'intérieur de la fente,  $E_{f2}$
- le champ radiatif diffusé dans l'air (milieu 3),  $E_{f3}$
- le champ de surface à l'interface verre/métal,  $E_{fs1}$ .

De même pour le champ associé au sillon, on a trois termes<sup>37</sup> :

- le champ radiatif diffusé dans l'air,  $E_{g3}$
- le champ de surface à l'interface air/métal,  $E_{gs}$
- le champ à l'intérieur du sillon,  $E_{gl}$ .

Voir la figure 4.3 pour une représentation schématique des différents champs considérés.

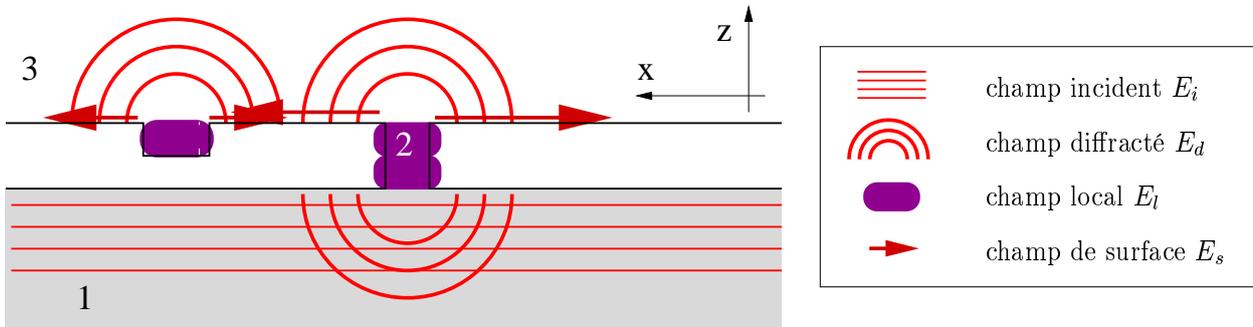


FIG. 4.3: Schéma des différents champs considérés en face de sortie.

Le processus de transmission de la lumière par les structures étudiées est décrit comme un couplage entre ces différents champs. On a vu dans le premier chapitre (voir §1.1.2) qu'on ne pouvait pas coupler directement un champ radiatif à un champ de surface. Dans notre description, les champs locaux sont donc les intermédiaires entre le champ radiatif et le champ de surface. On note par des lettres grecques minuscules les efficacités de conversion d'un champ vers l'autre. Les coefficients complexes de conversions *via* la fente du milieu  $j$  vers le milieu  $i$  sont notées  $\alpha_{ij}$ , et  $\beta_{ij}$  pour le sillon. Les indices  $i$  et  $j$  désignent les milieux 1 pour le substrat de verre, 2 pour le diélectrique dans le motif, 3 pour l'air et  $s$  pour l'interface. La norme de

<sup>37</sup>On utilise l'indice  $g$  (comme *groove*) pour les champs issus du sillon, l'indice  $s$  étant utilisé pour désigner les champs de surface.

ces coefficients donne l'efficacité scalaire de conversion du champ  $E_j$  vers le champ  $E_i$  et leur phase, notée  $\varphi_{ij}$  ( $\psi_{ij}$  pour le sillon) le retard de phase associé à cette conversion. Par exemple, la conversion d'un champ de surface vers un champ radiatif par diffraction par le sillon s'écrira<sup>38</sup> :  $E_{g3}(x_g, 0) = |\beta_{3s}| \exp(i\psi_{3s}) E_s(x_g)$ , où  $E_s(x_g)$  est le champ de surface évanescent issu de la fente.

### 4.3.2 hypothèses

On reprend les hypothèses du chapitre précédent (§3.3.3) :

1. les champs radiatifs émis sont cylindriques (ils ne dépendent pas de l'angle  $\theta$ ) :

$$E_{rad}(\mathbf{r}) = \frac{E_{rad}(x, 0)}{r} \exp i(kr - \omega t)$$

où la position  $\mathbf{r}$  est repérée par rapport à la source considérée en  $(x, 0)$ .

2. les champs de surface sont décrits comme des champs évanescents se propageant sur la surface avec une constante de propagation effective  $k_s = n_s k$ ,  $n_s$  est appelé indice de la surface, leur amplitude dépend éventuellement de la distance à la fente :

$$E_s(x, z) = E_s(x_0, 0) f(x) \exp i[\pm k_s(x - x_0) - \omega t]$$

où  $k_s$  et  $\kappa$  sont des réels. La fonction  $f(x)$  permet de rendre compte de l'éventuelle dépendance de l'amplitude de  $E_s$  avec la distance à sa source.

Comme précédemment, nous étudions deux situations : le sillon est placé face au laser d'excitation (face d'entrée) puis face au détecteur (face de sortie).

### 4.3.3 Sillon en face d'entrée

Le champ incident est diffracté par la fente et le sillon. On mesure l'intensité transmise à travers le substrat ( $z < e$ ),  $I_1 \propto E_1 \cdot E_1^*$ . Le champ radiatif  $E_1$  est proportionnel à l'amplitude du champ local dans la fente,  $E_{f2} = \alpha_{21} E_1$ . Ce champ résulte de l'interférence entre le champ incident et le champ de surface issu du sillon en  $(0, -e)$  (voir la figure 4.4). Seuls ces deux chemins optiques sont considérés, c'est-à-dire qu'on ne tient pas compte des processus d'ordres supérieurs, comme par exemple le chemin qui passerait par le champ de surface issu de la réflexion par le sillon du champ de surface créé par la fente. On peut donc écrire :

$$E_1 = \alpha_{12} E_l = \alpha_{12} (\alpha_{23} E_3 + \alpha_{2s} E_s e^{i\phi_s}) = \alpha_{12} (\alpha_{23} + \alpha_{2s} \beta_{s3} f(x) e^{i\phi_s}) E_3 \quad (4.1)$$

On suppose que les coefficients complexes  $\alpha_{ij}$  et  $\beta_{s3}$  ne dépendent que de la géométrie de la fente et du sillon, respectivement. Le terme  $\exp(i\phi_s)$  correspond au retard de phase associé à la propagation du champ de surface entre le sillon et la fente.

$$\phi_s = n_s \frac{2\pi}{\lambda} x_g \quad (4.2)$$

<sup>38</sup>Un formalisme similaire pour le taux de transmission d'une fente seule est employé dans l'équation (1.37), p.98 d'après Y. Takakura [53].

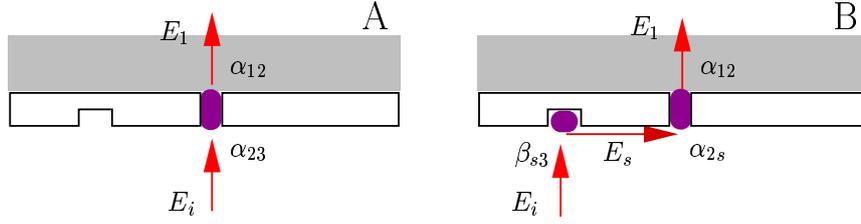


FIG. 4.4: L'intensité observée résulte des interférences entre les deux chemins A et B.

D'où l'expression de l'intensité transmise en fonction de la distance fente-sillon :

$$I(x_g) = I_0 [1 + \eta_i(x_g)^2 + 2\eta_i(x_g) \cos(\phi_s(x_g) + \phi_i)] \quad (4.3)$$

Avec :

$$\eta_i(x_g) = \frac{|\alpha_{2s}| |\beta_{s3}|}{|\alpha_{23}|} f(x_g) = \eta_i^\infty f(x_g) \quad \text{et} \quad (4.4)$$

$$\phi_i = \varphi_{2s} + \psi_{s3} - \varphi_{23} \quad (4.5)$$

$\phi_i$  est appelée la phase intrinsèque du champ associé au sillon. On suppose que ce retard de phase ne dépend pas de la distance fente-sillon. On pose par convention  $\varphi_{23} = 0$ .

$I_0$  est l'intensité transmise en l'absence de sillon. L'observation de l'intensité transmise en fonction de  $x_g$  permet de déduire  $\eta_i$  et  $\phi_i$ .

On attend donc un signal modulé à la fréquence spatiale  $2\pi n_s/\lambda$ , l'amplitude de modulation étant proportionnelle à l'amplitude du champ de surface. Le facteur de proportionnalité est égal au produit des efficacités de couplage entre le champ incident et le mode du sillon, et du mode du sillon avec le champ de surface. Notons que l'analyse ci-dessus s'applique aussi au doublet trou-sillon.

Comme nous allons le voir, une information similaire sera obtenue en plaçant le sillon face au détecteur.

#### 4.3.4 Sillons en face de sortie

En face de sortie, on observe les interférences entre les champs propagatifs émis par la fente  $E_{f3}$  et le sillon  $E_{g3}$ . Les deux chemins possibles sont schématisés sur la figure 4.5. On néglige ici encore les chemins d'ordres supérieurs.

Les amplitudes de ces deux champs sont proportionnelles à l'amplitude du champ incident. Selon nos conventions,  $E_{f3} = \alpha_{32}\alpha_{21}E_1$  et  $E_{g3} = \beta_{3s}\alpha_{s2}\alpha_{21}E_1$ .

Comme dans le cas du groupe de sillon décrit au chapitre précédent, la différence de phase entre ces deux champs à un angle  $\theta$  donné s'écrit (voir la figure 4.6) :

$$\phi_s(\theta, x_g) = \frac{2\pi x_g}{\lambda} (n_s + \sin \theta) \quad (4.6)$$

On peut donc donner l'expression de l'intensité détectée en fonction de  $\theta$  :

$$I(\theta, x_g) = I_0 [1 + \eta_o^2 + 2\eta_o \cdot \cos(\phi_s(x_g) + \phi_o)] \quad (4.7)$$

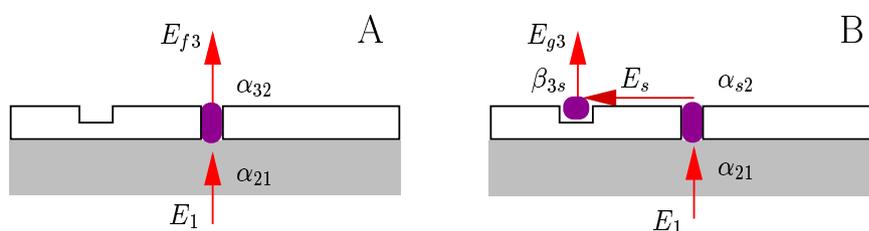


FIG. 4.5: Le champ propagatif résulte des interférences entre les deux sources schématisées ici.

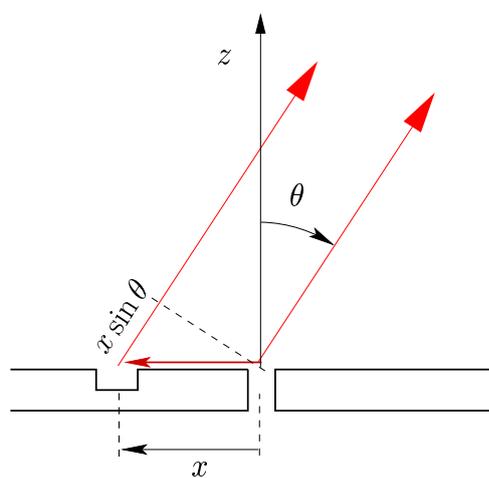


FIG. 4.6: Différence de chemin entre les faisceaux émis par la fente et par le sillon à un angle  $\theta$  donné.

Avec :

$$\eta_o(x_g) = \frac{|\beta_{3s}||\alpha_{s2}|}{|\alpha_{32}|} f(x_g) = \eta_o^\infty f(x_g) \quad \text{et} \quad \phi_o = \psi_{3s} + \varphi_{s2} - \varphi_{32}$$

D'après l'équation (4.7) le spectre angulaire observé doit donc être une fonction sinusoïdale de  $\sin \theta$ . Le contraste des oscillations d'intensité dépend de l'amplitude du champ de surface, normalisée par l'amplitude du champ radiatif issu de la fente.<sup>39</sup> Cette amplitude dépend *a priori* de la distance  $x_g$  entre la fente et le sillon, de la géométrie de la fente, qui détermine l'amplitude relative des champs évanescent et radiatif, et de la géométrie du sillon, qui détermine l'efficacité de couplage entre le champ évanescent et le champ radiatif. En faisant varier ces paramètres, on peut analyser les contributions respectives de chacun de ces termes.

L'asymétrie entre les deux émetteurs d'une structure à un seul sillon permet en outre de mesurer directement la phase relative du champ émis par le sillon et du champ radiatif issu de la fente,  $\phi_{gs}$ , donnée par la phase du signal sur l'axe optique. Cette phase dépend de la distance fente-sillon, et du retard de phase intrinsèque  $\phi_i$  associé au couplage du champ à l'intérieur de la fente au champ de surface,  $\varphi_{s2}$ , et du champ de surface au champ propagatif *via* le sillon,  $\psi_{23}$ .

Contrairement à l'analyse en face d'entrée, la description ci-dessus ne s'applique bien sûr pas à un doublet trou-sillon. Le champ émis par le trou est alors hémisphérique et la figure d'interférence obtenue ne s'exprime pas de manière aussi simple. Ceci nous dissuade d'étudier le doublet trou-sillon en face de sortie.

## 4.4 Franges d'interférence en face d'entrée

### 4.4.1 Méthode de mesure de l'intensité transmise pour les structures linéaires

Le sillon est placé face au laser d'excitation. Comme dans le cas de motifs périodiques, on s'attend à voir une modification de l'intensité transmise en fonction de la distance fente-sillon. Les mesures sont réalisées avec le goniomètre. On enregistre le diagramme d'émission des structures. On vérifie que l'on a bien une source ponctuelle en examinant la distribution angulaire, dont un exemple est donné dans la figure 4.7. Celle-ci n'est pas plate, mais présente des oscillations de fréquence croissante lorsqu'on s'éloigne de l'axe optique. Ces oscillations sont dues aux réflexions du champ diffracté sur l'interface verre/air qui fait face au goniomètre : un rayon émis avec un angle  $\theta$  subit une réflexion partielle sur le dioptre, ce faisceau étant à son tour réfléchi par la couche métallique. La différence de phase pour ces deux faisceaux s'écrit :

$$\Delta\phi(i) = \frac{2\pi}{\lambda} 2n_v e \cos \theta \quad (4.8)$$

Où  $n_v$  est l'indice du verre, et  $e$  son épaisseur. On en déduit l'expression de la distribution angulaire :

$$I(\theta) = I_0(1 + \alpha^2 + \alpha \cos \Delta\phi) \quad (4.9)$$

---

<sup>39</sup>Ce qui permet de s'affranchir des variations absolues de l'intensité transmise par la fente d'une structure à l'autre, comme nous le faisons remarquer plus haut.

Cette expression reproduit bien les oscillations de la distribution d'intensité observée. On observe aussi une variation de la ligne de base de cette distribution. Cette variation est due à l'angle résiduel entre le plan du détecteur et le plan perpendiculaire à la fente, et reproduit la distribution d'intensité selon  $y$ , comme nous l'avons expliqué plus haut.

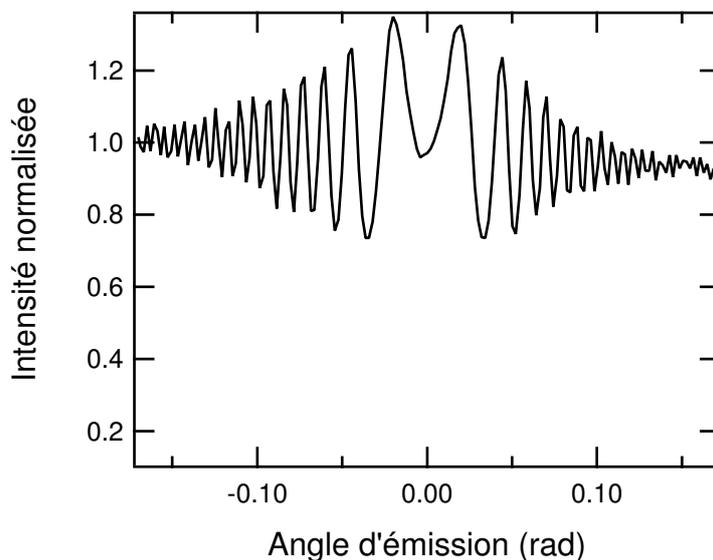


FIG. 4.7: Spectre angulaire – structures en face d'entrée. Les oscillations sur l'axe optique sont dues aux interférences du champ transmis sur l'interface verre/air. La courbure générale est due à l'angle entre le plan d'émission de la structure et le plan de la trajectoire du détecteur, comme décrit au paragraphe 3.1.5.

La mesure de l'intensité transmise est réalisée en intégrant ce signal sur une partie plate de la distribution, c'est-à-dire quand les oscillations sont filtrées par la détection, par exemple pour  $\theta > 0,15$  sur la figure 4.7. La normalisation est obtenue en mesurant la transmission des fentes nues gravées sur l'échantillon. Ces fentes permettent par ailleurs une mesure de l'écart type de la transmission pour des structures identiques, qui fournit les barres d'erreurs verticales des graphes rapportées ci-après. L'écart type mesuré est de l'ordre de 6%.

Pour le doublet trou-sillon, on utilise l'objectif de microscope et le dispositif décrit au §3.1.1.

#### 4.4.2 Mesures

Nous donnons ici les résultats des mesures en face d'entrée pour trois séries de structures composées des motifs suivants :

1. une fente de  $100 \text{ nm} \times 20 \text{ }\mu\text{m}$  et un sillon large ( $b = 415 \text{ nm}$ ,  $h = 150 \text{ nm}$ )
2. une fente de  $100 \text{ nm} \times 20 \text{ }\mu\text{m}$  et un sillon fin ( $b = 100 \text{ nm}$ ,  $h = 150 \text{ nm}$ )
3. un trou de diamètre  $300 \text{ nm}$  et un sillon fin ( $b = 415 \text{ nm}$ ,  $h = 70 \text{ nm}$ )

La figure 4.8 donne les images par microscope électronique de deux de ces structures. Comme on l'a signalé, l'incrément de distance fente-sillon entre deux structures successives de la même série est de  $103 \text{ nm}$ .

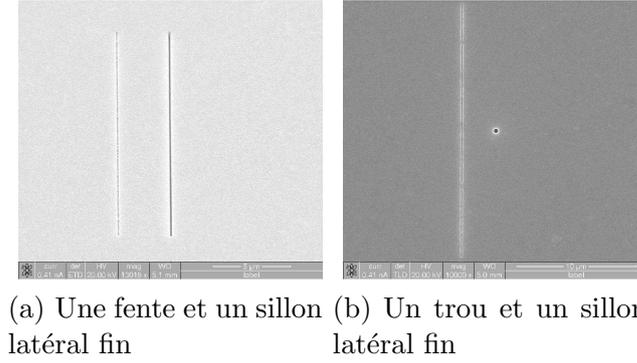


FIG. 4.8: Images au microscope électronique à balayage de deux éléments des séries de structures étudiées

L'intensité transmise par chaque structure, normalisée à l'intensité moyenne transmise par les fentes nues, est tracée en fonction de la distance fente-sillon. On obtient pour ces quatre séries les graphiques de la figure 4.9.

On obtient bien des franges d'interférence qui défilent en fonction de la distance fente-sillon ou trou-sillon, avec un comportement périodique. L'amplitude diminue d'abord rapidement, puis apparaît constante sur la gamme de distances étudiée.

Pour déterminer les caractéristiques de ces différentes structures, nous avons ajusté à chacune d'elles une fonction  $I(x)/I_0$  donnée par l'équation (4.7). Pour reproduire la variation d'amplitude des franges d'interférences, nous avons considéré que  $f(x)$  variait comme  $1 + x_0/x$ . On ajuste aux données expérimentales une courbe d'équation :

$$\begin{aligned}
 I(x) &= I_0 \left[ 1 + (\eta_i^\infty f(x))^2 + 2\eta_i^\infty f(x) \cos(\phi_s(x) + \phi_i) \right] \quad \text{soit,} \\
 I(x)/I_0 &= 1 + [\eta_i^\infty (1 + x_0/x)]^2 \\
 &\quad + \eta_i^\infty (1 + x_0/x) \cos \left( \frac{2\pi n_s}{\lambda} x + \phi_i \right) \\
 &\quad \text{avec } f(x) = 1 + x/x_0
 \end{aligned} \tag{4.10}$$

Les données sont ajustée à l'aide des quatre paramètres libres de l'équation (4.10) :

- $\eta_i^\infty$ , qui donne l'amplitude relative des champs issus du sillon par rapport au champs directement transmis à travers la fente ou le trou, pour  $x \gg x_0$
- $x_0$  qui donne une distance caractéristique de décroissance du champ de surface
- $n_s$  correspondant à l'indice effectif vu par l'onde de surface
- $\phi_i$  qui correspond au retard de phase intrinsèque du champ issu du sillon par rapport au champ directement couplé dans la fente ou le trou.

Le tableau 4.2 donne les valeurs des différents paramètres ajustés par la méthode des moindres carrés aux données présentées dans la figure 4.9.

#### Remarque sur le choix de la fonction $f(x)$ décrivant la variation d'amplitude

Avant de commenter les résultats obtenus, nous voudrions justifier le choix de la forme de la fonction  $f(x)$ . Nous avons choisi une fonction  $1 + x_0/x$  pour décrire la variation d'amplitude des

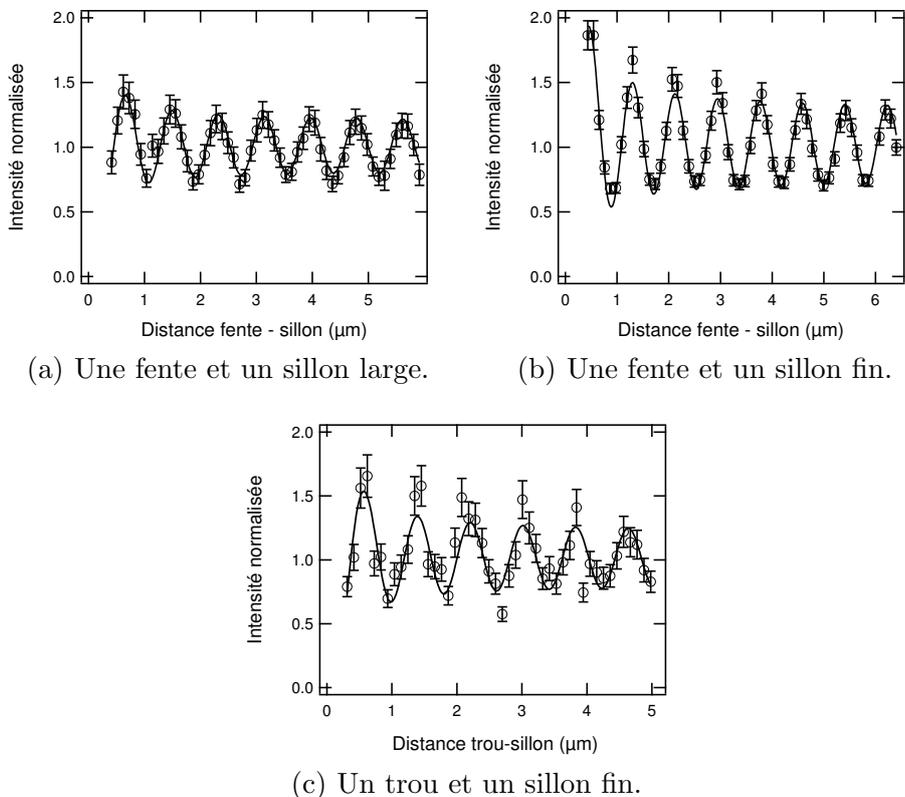


FIG. 4.9: Intensité transmise en fonction de la distance pour différentes séries de motifs. Les courbes en trait plein correspondent aux ajustements par la fonction donnée dans l'équation (4.10).

Échantillon	$\eta_i^\infty$	$x_0$ ( $\mu\text{m}$ )	$n_s$	$\phi_i$ ( $\pi$ )
une fente et un sillon large	$0,09 \pm 0,01$	$0,67 \pm 0,11$	$1,04 \pm 0,02$	$0,37 \pm 0,02$
une fente et un sillon fin	$0,13 \pm 0,01$	$0,92 \pm 0,09$	$1,04 \pm 0,03$	$0,82 \pm 0,02$
un trou et un sillon fin	$0,13 \pm 0,02$	$0,15 \pm 0,15$	$1,05 \pm 0,03$	$0,55 \pm 0,05$

TAB. 4.2: Valeurs des paramètres ajustés pour les intensités transmises en face d'entrée. Les incertitudes associées sont données par la procédure d'ajustement, et correspondent à un intervalle de confiance de 95 %.

franges d'interférence afin d'avoir une description phénoménologique simple de cette variation. On peut aussi utiliser une fonction  $1 + \rho \exp(-x/x_0)$ , qui donne des résultats d'ajustements très similaires, c'est à dire des valeurs de  $\chi^2$  proches de celles obtenues ci-dessus. Cette fonction nécessite cependant l'emploi d'une variable d'ajustement supplémentaire. On vérifie par contre qu'une simple décroissance exponentielle, soit  $f(x) = \exp(-x/x_0)$ , donne un  $\chi^2$  significativement plus important. Il faut donc considérer une variation à deux composantes, l'une décroissant rapidement sur une distance de l'ordre de quelques centaines de nanomètres, et l'autre d'amplitude constante sur la gamme de distances étudiée.

## Discussion des résultats

L'examen de ces résultats amène plusieurs observations :

- À grande distance, l'amplitude du champ issu du sillon est constante et vaut environ 10% du champ directement transmis par l'ouverture. Cette valeur varie relativement peu pour les géométries considérées.
- Le paramètre  $x_0$  varie beaucoup plus d'une série de structures à l'autre, et reste inférieur à 1  $\mu\text{m}$ . Ce terme traduit des effets de champs proches lorsque la distance entre les motifs et de l'ordre de la longueur d'onde. Le nombre de points est insuffisant pour en mesurer les détails.
- L'indice mesuré est identique à l'incertitude expérimentale près dans les trois mesures, et vaut environ 1,04. Cette valeur est différente de l'indice d'un plasmon polariton de surface tel que nous l'avons calculée dans le premier chapitre de cette partie (voir p.88),  $n_{spp} = 1,015$ . Nous reviendrons plus loin sur cette mesure.

## 4.5 Figures d'interférence en face de sortie

La mesure des spectres d'émission angulaire en face de sortie permet d'obtenir des informations similaires à celles obtenues en face d'entrée. Nous verrons cependant que l'on obtient plus d'information dans cette configuration et nous présentons ici des résultats obtenus pour une plus grande variété de géométries. Dans une première section, nous montrerons les résultats obtenus pour une série de structures particulière. Nous verrons comment sont analysées les mesures effectuées pour en déduire les caractéristiques du champ émis par le sillon. Dans une deuxième partie, les effets d'une modification de la géométrie du sillon sur ces caractéristiques sont étudiés, à partir des mesures effectuées sur 18 échantillons différents (les échantillons X, XI et XIV). Il nous faut d'abord donner quelques précisions sur le comportement des fentes non décorées.

### 4.5.1 Fentes nues et normalisation

Pour les sillons placés en face de sortie, le spectre angulaire des fentes non-décorées est employé pour normaliser les mesures des fentes décorés et corriger ces mesures de l'erreur d'alignement des plans d'émission et de mesure décrite plus haut (§3.1.5). Lorsqu'on enregistre les spectres angulaires des sept fentes nues d'un échantillon, on constate une grande dispersion dans leur valeur moyenne, bien que la forme des courbes soient identiques (voir la figure 4.10).

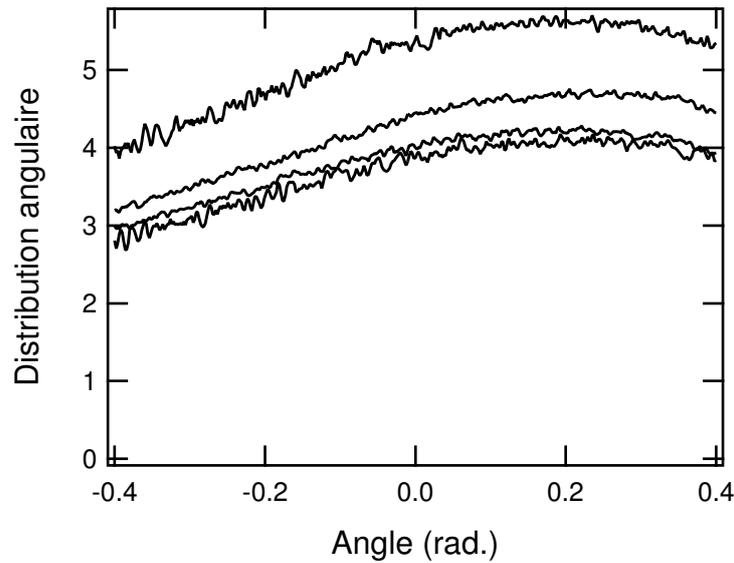


FIG. 4.10: Exemples de spectres angulaires brut de fentes non-décorées.

Nous pensons que cet effet est dû à une variation de l'épaisseur absolue du substrat de verre et à l'effet de cavité entre l'interface air/verre et l'interface verre/métal, visible dans les distributions angulaires d'intensité dans les expériences en face de sortie (§4.4.1). Même si la planéité des substrats employés est inférieure à  $\lambda/10$ , les variations d'épaisseur peuvent sûrement être de l'ordre de la longueur d'onde d'un bout à l'autre du substrat, soit une variation de 0,1% de l'épaisseur totale, du fait d'un mauvais parallélisme des faces – une erreur de  $5 \cdot 10^{-7}$  rad étant suffisante. Comme on peut le constater sur la figure 4.7, en face d'entrée, la visibilité des franges d'interférences près de l'axe optique est de l'ordre de 30%, qui se traduira en face de sortie par une variation maximale d'un facteur 2 dans l'intensité transmise par la fente, pour une variation d'épaisseur de  $\lambda/2$ , soit 430 nm.

Nous verrons par la suite que cette dispersion en intensité absolue n'est pas gênante dans l'interprétation des résultats, les grandeurs déduites des spectres angulaires étant indépendantes de l'intensité absolue du champ mesuré. Il sera par contre souhaitable d'en tenir compte pour des structures destinées à une application avec des atomes froids. Il devrait alors suffire de déposer un traitement anti-reflet sur l'interface air/verre des substrats pour minimiser cette réflexion parasite.

#### 4.5.2 Amplitude, phase et nombre d'onde effectifs de l'onde de surface

Donnons en premier lieu quelques exemples des spectres angulaires obtenus pour des structures à une fente de  $100 \text{ nm} \times 20 \text{ }\mu\text{m}$  et un sillon fin ( $b = 100 \text{ nm}$ ) (voir la figure 4.11(a)).

On obtient des signaux modulés avec une amplitude que l'on peut considérer constante en première approximation. Dans notre modèle (voir les équations (4.6) et (4.7)), la distribution d'intensité normalisée par le spectre d'une fente nue varie sinusoidalement avec  $\sin \theta$ . La figure 4.11(b) représente les données précédentes normalisées et représentées en fonction de  $\sin \theta$ .

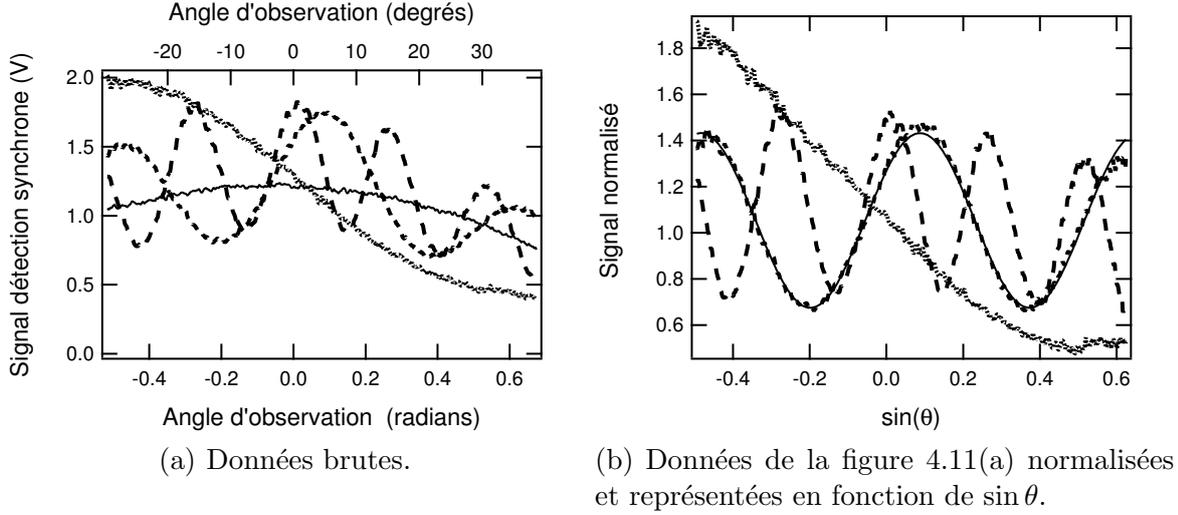


FIG. 4.11: Spectres angulaires de motifs asymétriques (XIc) (a) : en traits pleins : fente nue, pointillés :  $x_g = 415$  nm, 1560 nm, et 2600 nm. (b) : en pointillés : mêmes  $x_g$  qu'en (a). En traits pleins pour  $x_g = 2600$  nm, ajustement d'une courbe d'équation (4.7)

Comme en face d'entrée, on obtient les caractéristiques de la structure considérée en ajustant une courbe dont l'équation est déduite de la relation 4.7, soit :

$$I(\theta, x_g) = I_0 \left[ 1 + \eta_o(x_g)^2 + 2\eta_o(x_g) \cos \left( \frac{2\pi x_g}{\lambda} (n_s + \sin \theta) + \phi_o \right) \right] \quad (4.11)$$

écrit sous la forme :

$$I(\sin \theta) = B + A \cos(F \sin \theta + \phi) \quad (4.12)$$

$$\text{avec :} \quad (4.13)$$

$$B = I_0 [1 + \eta_o(x_g)^2] \quad (4.14)$$

$$A = 2I_0\eta_o$$

$$F = \frac{2\pi x_g}{\lambda}$$

$$\phi = \frac{2\pi x_g}{\lambda} n_s - \phi_o$$

On peut donc déduire les caractéristiques de l'onde diffractée par le sillon à partir des valeurs des paramètres  $B$ ,  $A$ ,  $F$  et  $\phi$  obtenues par ajustement.

### Fréquence angulaire

Dans l'équation 4.11, le terme  $F$ , correspondant à la fréquence angulaire de la modulation, ne dépend que de la distance fente – sillon. Ce terme rend compte de la différence de chemin optique dans l'air des champs issus de la fente et du sillon. Il est identique à celui que l'on obtiendrait dans une expérience de fentes d'Young classique. On a  $F = (2\pi/\lambda)x_g$ . La valeur

de  $\lambda$  étant connue avec une grande précision, la variation de  $F$  en fonction de  $x_g$  nous permet donc d'estimer les erreurs associées à l'étalonnage angulaire du goniomètre et à l'étalonnage spatial du FIB. Le graphique de la figure 4.12 donne la valeur de  $F$  en fonction de  $x_g$ . Sur ce graphique est aussi portée la fréquence angulaire calculée à la distance fente-sillon nominale.

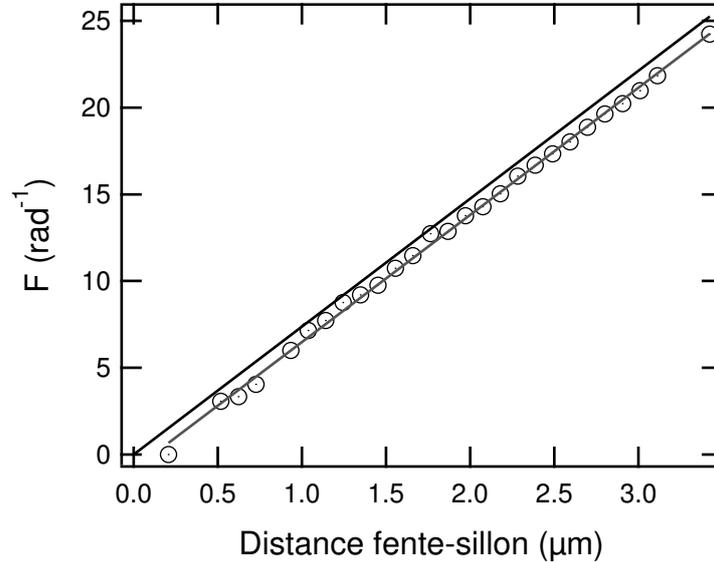


FIG. 4.12: Fréquence angulaire d'une série de structures en fonction de la distance fente-sillon. Trait plein noir : valeur théorique à la distance nominale. Trait plein gris : régression linéaire sur les points expérimentaux.

La pente de la régression linéaire en gris sur la figure 4.12 vaut  $0,98 \pm 0,02$  en unités de  $2\pi/\lambda$ . En moyenne sur les sept séries de structures "flamme XI", la pente moyenne mesurée vaut  $1,007 \pm 0,008 2\pi/\lambda$ . On peut conclure que la précision résultant des étalonnages de distance et angulaire est de l'ordre de 1 %, avec une dispersion du même ordre d'une structure à l'autre. On retrouvera cette erreur par la suite pour la mesure de l'indice effectif  $n_s$ . Le décalage entre la droite théorique et la régression linéaire correspond à un décalage de la distance effective entre les deux sources de -200 nm sur le graphe présenté ici. En moyenne sur les séries XI, on trouve un décalage de  $-50 \text{ nm} \pm 100 \text{ nm}$ . Ce décalage n'est donc pas significatif dans nos mesures.

Notons que cette précision, limitée principalement par la précision du goniomètre, est très encourageante dans la perspective de l'utilisation d'ouvertures sub-longueur d'onde comme sources de pièges optiques. On sait qu'on obtiendra une très bonne adéquation entre la structure dessinée et le motif effectivement fabriqué.

La mesure de la fréquence angulaire des figures de diffraction permet donc de vérifier que nos étalonnages sont corrects. Voyons maintenant plus spécifiquement ce que ces courbes permettent de déduire sur les propriétés du champ émis par les sillons.

## Amplitude

Le contraste de la figure d'interférence d'un motif une fente + un sillon s'écrit :

$$C(x) = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} = \frac{2\eta_o}{1 + \eta_o^2} = \frac{A}{B} \quad (4.15)$$

D'où :

$$\eta_o = \frac{1 - \sqrt{1 - C^2}}{C} \quad (4.16)$$

Au premier ordre en  $\eta_o$ , on a simplement  $\eta_o = C/2$ . La figure 4.5.2 donne les valeurs de  $\eta_o$  en fonction de  $x_g$  obtenues pour la série de structures XIc dont on a présenté quelques spectres ci-dessus.

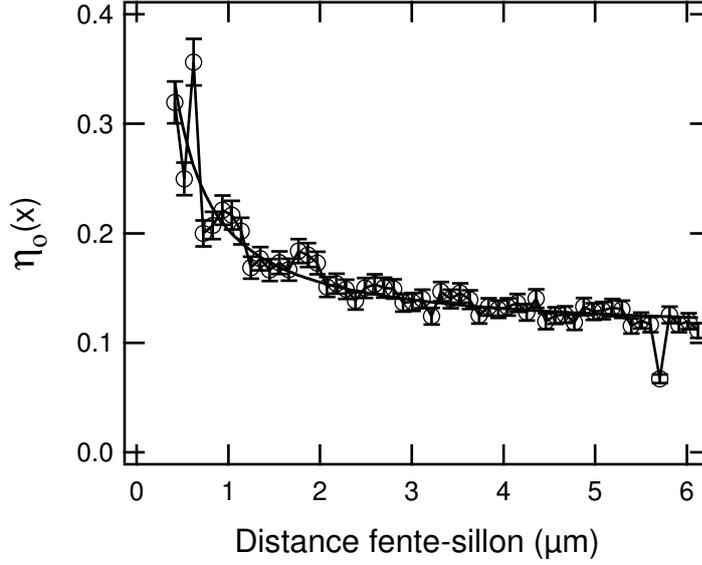


FIG. 4.13: Amplitude relative de l'onde diffractée en fonction de la distance fente-sillon. Traits plein : courbe ajustée d'équation  $\eta_o = \eta_o^\infty (1 + x_0/x_g)$ , avec  $\eta_o^\infty = 0,15 \pm 0,01$  et  $x_0 = 0,7 \mu\text{m}$ .

Comme dans les expériences en face d'entrée, on utilise la fonction phénoménologique  $f(x) = 1 + x_0/x$  pour décrire la variation de  $\eta_o$  en fonction de la distance fente-sillon.

Remarquons en premier lieu que dans les limites de notre incertitude expérimentale, il n'y a pas dans ces courbes de contribution significative d'un champ de surface réfléchi sur l'échantillon et diffracté par la fente. Cet effet impliquerait une modulation de  $\eta_o$  avec une période de  $\lambda/2$ , alors que la variation d'amplitude du champ diffractée apparaît monotone.

D'autre part, les observations en face de sortie et en face d'entrée sont cohérentes. Les portées  $x_0$  du champ de surface d'une part et le coefficient  $\eta_o^\infty$  d'autre part sont du même ordre de grandeur,  $1 \mu\text{m}$  et  $0,1$ , respectivement.

La composante d'amplitude constante pourrait être assimilée à un plasmon polariton de surface, en accord avec le modèle de Ph. Lalanne *et al.* [61]. À partir de la mesure pour nos échantillons de la constante diélectrique par ellipsométrie (voir le tableau 1.1, p.88) et des mesures de la rugosité  $\delta$  et de la longueur de corrélation de la surface  $\sigma$  par microscopie à force atomique ( $\delta = 1,29 \text{ nm RMS}$  et  $\sigma = 154,3 \text{ nm}$ ), réalisées à Caltech par H. Lezec et les membres de l'équipe de H. Atwater, on peut déterminer [47] les longueurs d'atténuation d'un plasmon polariton de surface par absorption  $L_{abs}$ , par diffusion sur la surface  $L_{diff}$  et par re-radiation  $L_{rad}$ . Leurs valeurs sont données dans le tableau 4.3.

La longueur d'atténuation d'un plasmon polariton de surface, dominée par l'absorption,

$L_{abs}$	absorption	109 $\mu\text{m}$
$L_{diff}$	diffusion	2,56 $10^4 \mu\text{m}$
$L_{rad}$	radiation	5,00 $10^4 \mu\text{m}$

TAB. 4.3: Longueurs d'atténuation d'un plasmon polariton de surface pour nos films d'argent.

est de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$  et l'amplitude d'un plasmon polariton de surface apparaîtrait donc constante sur la gamme de distance considérée.

Mais on a vu que l'indice de réfraction effectif  $n_{spp}$  d'un plasmon polariton de surface valait 1,015 pour l'argent à 852 nm, selon la mesure de la constante diélectrique effectuée sur les échantillons utilisés dans ces expériences. Le terme de phase de l'expression 4.11 dépend de l'indice  $n_s$  de la surface, que l'on va maintenant estimer.

### Indice effectif et phase

En  $\theta = 0$ , les chemins optiques des champs issus de la fente et du sillon sont identiques dans l'air, et la différence de phase est donc accumulée sur la surface. Le graphique de la figure 4.14 donne le cosinus de  $\pi/2 - \phi$ , soit  $\cos((2\pi.n_s/\lambda)x_g + \phi_o)$  en fonction de  $x_g$  à partir des valeurs de  $\phi$  obtenues par ajustement pour chaque spectre de la série XIc.<sup>40</sup>

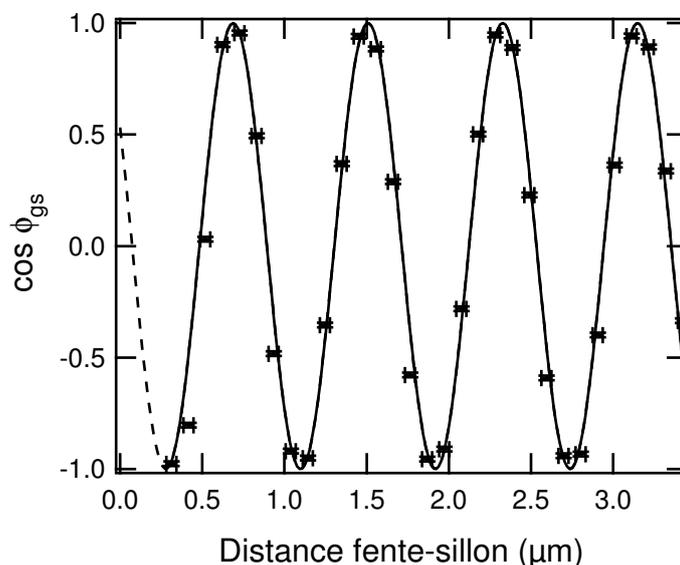


FIG. 4.14: Cosinus du retard de phase sur l'axe optique du champ issu du sillon par rapport à la fente, en fonction de la distance fente – sillon.

On ajuste aux données une courbe d'équation  $g(x) = \cos((2\pi.n_s/\lambda)x + \phi_o)$ . On obtient :  $n_s = 1,047 \pm 0,010$  et  $\phi_o = 0,32 \pm 0,02\pi$ . Nous discuterons plus loin (§4.5.3) de la valeur de la phase déduite de ces mesures, pour nous concentrer maintenant sur la valeur de l'indice.

<sup>40</sup>On ne trace pas directement  $\phi$ , qui n'est définie que modulo  $2\pi$ .

L'analyse décrite ci-dessus a été appliquée à diverses séries de structures. Si l'on admet que  $n_s$  est indépendant de la géométrie de l'échantillon, on peut considérer l'ensemble des mesures effectuées comme un ensemble statistique permettant d'estimer cet indice avec une bonne précision.<sup>41</sup> Les valeurs de  $n_s$  pour 18 mesures différentes sont rapportées sur le graphe de la figure 4.15. Les barres d'erreurs pour chaque mesure sont données par la somme de l'incertitude de la procédure d'ajustement et d'une erreur systématique de 0,01 due à l'incertitude sur les calibrations du FIB et du goniomètre.

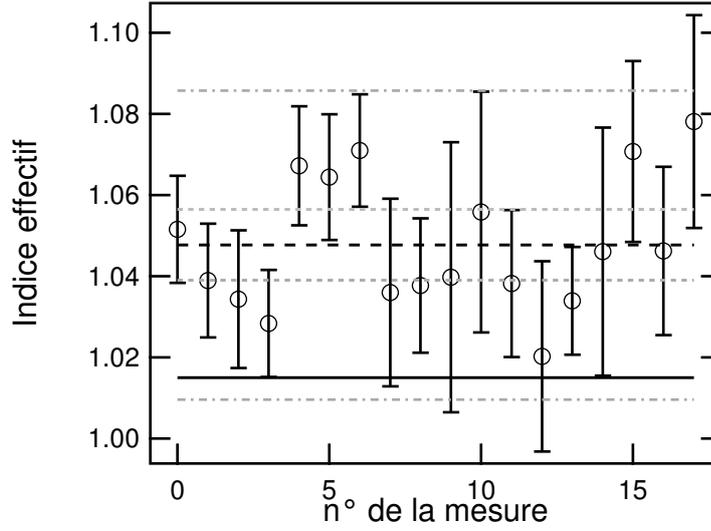


FIG. 4.15: Graphique rapportant les différentes mesures d'indices effectuées, et la valeur moyenne pondérée par les erreurs respectives déduites de ces indices (en pointillés épais). Les droites en pointillés gris au dessus et au dessous de cette ligne correspondent à un intervalle de confiance de 95%, les lignes les plus extérieures à deux écarts types des mesures, incertitudes comprises. La droite en trait plein noir correspond à l'indice d'un plasmon polariton de surface [47].

La valeur moyenne de cet ensemble de résultats – pondérée par leurs incertitudes respectives – donne un indice effectif pour le champ de surface de  $1,0477 \pm 0,0085$ . L'erreur donnée correspond ici à un intervalle de confiance de 95%.<sup>42</sup> Cette valeur est donc significativement différente de la valeur de  $n_{spp}$ , soit 1,015, attendue pour un plasmon polariton de surface. Le champ de surface ne peut donc pas être décrit comme un plasmon polariton de surface tel qu'il est décrit par H. Raether [47]. Jusqu'ici, nous n'avons pas d'explication satisfaisante de cet effet. Des sections des films d'argent employés ont été imagées par microscopie électronique pour déterminer la composition chimique de l'interface. Nous avons vérifié qu'aucune impureté ( $\text{Ag}_2\text{O}$  ou  $\text{Ag}_2\text{S}$ ) ne modifie sensiblement la surface. D'autres mesures sont en cours avec des structures similaires en or, donc pour une constante diélectrique et un  $n_{spp}$  différents.

Le grand nombre de structures étudiées dans ces expériences nous a donc permis de déterminer précisément la constante de propagation du champ guidé à l'interface. Comme on l'a vu

<sup>41</sup>Nous n'avons pas constaté d'effet systématique de la géométrie des échantillons sur la valeur de  $n_s$ .

<sup>42</sup>On considère une distribution normale de l'incertitude associée à chaque mesure.

au chapitre précédent, cette précision est importante si l'on souhaite construire des structures efficaces avec des dimensions importantes devant la longueur d'onde, une erreur de 4% correspondant à un décalage de  $\pi/2$  entre les périodes effectives et théoriques de la variation de phase pour une distance de 10  $\mu\text{m}$ . Il est donc essentiel de comprendre l'origine physique de cette valeur, qui devra être reproduite par les modèles décrivant ces structures.

Toujours dans l'optique d'une application des éléments présentés ici à la réalisation de structures efficaces, il est intéressant d'étudier la variation des caractéristiques du champ diffracté en fonction de la géométrie du sillon.

### 4.5.3 Effets de la géométrie du diffuseur

Naturellement, l'amplitude  $\eta_o$  et la phase  $\phi_o$  du champ radiatif issu du sillon dépendent de sa géométrie. Nous avons donc étudié deux séries de structures, pour deux largeurs de sillon différentes, 415 nm et 100 nm. Dans chacune de ces séries, la profondeur du sillon a été variée de 32 à 256 nm, nominalement. Une image au microscope à force atomique du fond d'un de ces sillons montre cependant que la surface possède une rugosité de l'ordre de 30 nm, cette rugosité augmentant lorsqu'on augmente la profondeur du sillon, du fait de l'augmentation de la dose d'ions  $\text{Ga}^+$  nécessaire.

On peut comparer les valeurs des différents paramètres d'ajustement déjà discutés. Nous n'avons pas constaté de variation systématique de la portée  $x_0$  de la composante rapidement décroissante de  $\eta_i$  en fonction de la profondeur ou de la largeur du sillon. Comme on l'a remarqué au chapitre précédent, ce paramètre varie beaucoup d'une série de structures à l'autre et la précision des mesures n'est pas suffisante pour analyser finement le comportement du champ lorsque la fente et le sillon sont proches.

La valeur de l'indice de surface  $n_s$ , dans la limite de notre incertitude expérimentale, ne montre pas non plus de variation systématique en fonction de la géométrie du sillon. La précision expérimentale est ici suffisante pour conclure que cette valeur doit être caractéristique du matériau.

#### Effet de la profondeur du sillon sur l'amplitude du champ diffracté

Par contre, la profondeur du sillon influe sur la valeur asymptotique de l'amplitude relative du champ diffracté,  $\eta_o^\infty$ . La figure 4.16 donne les valeurs de  $\eta_o^\infty$  en fonction de la profondeur nominale du sillon pour les deux largeurs considérées.

Ces données font apparaître un maximum d'efficacité pour une profondeur d'environ 175 nm, pour les deux largeurs de sillon étudiées, qui donnent des résultats similaires.<sup>43</sup> On peut considérer que cette résonance est associée à un effet de cavité dans le sillon [80]. Il est donc naturel d'ajuster une fonction  $A \sin^2(k_h h)$  à ces résultats. Ces ajustements sont donnés en traits pleins et pointillés sur la figure 4.16, pour les sillons fins et larges, respectivement. On obtient  $A = 0.22$  (0.20) et  $k_h = 8.4 \mu\text{m}^{-1}$  ( $9.9 \mu\text{m}^{-1}$ ) pour les sillons fins (larges). Si on écrit  $k_h = 2\pi/\lambda_h$  on a  $\lambda_h \simeq 700$  nm.

Dans l'optique d'une application pratique de ces structures, cette résonance montre l'importance de l'optimisation de ce paramètre. On gagne en effet un facteur 2 sur l'amplitude du

<sup>43</sup>Une étude systématique de ce paramètre serait nécessaire.

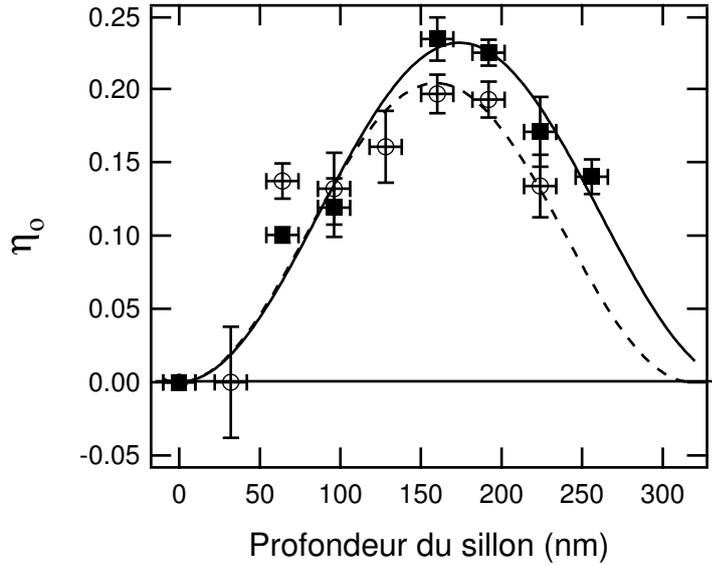


FIG. 4.16: Composante constante de l'amplitude relative de l'onde diffractée en fonction de la profondeur du sillon. Carrés pleins : sillons fins ( $b=100$  nm), cercles ouverts : sillons larges ( $b=415$  nm); traits pleins : ajustement par une fonction  $A \sin^2(k_h h)$  pour les sillons fins; traits pointillés : ajustement de la même fonction pour les sillons larges.

champ diffracté en passant de 100 nm à 175 nm de profondeur. Avec une efficacité de diffraction de 25 %, un faible nombre de sillons permet d'obtenir une modulation importante de l'intensité, ce qui est intéressant pour la réalisation de pièges dipolaires, notamment en permettant une grande compacité des structures employées.

L'autre paramètre d'ajustement dépendant de la profondeur du sillon est la phase intrinsèque du champ issu du sillon.

### Effet de la profondeur du sillon sur la phase intrinsèque

Les valeurs de  $\phi_o$  obtenues pour les deux largeurs de sillons sont rapportées sur le graphe de la figure 4.17. Ici encore, on ne voit pas de différence sensible due à la largeur des sillons.

Une régression linéaire sur ces données donne une phase à l'origine de  $0,16 \pi$  ( $0,24 \pi$ ) et une pente de  $2,2 \pi \mu\text{m}^{-1}$  ( $1,5 \pi \mu\text{m}^{-1}$ ) pour les fentes fines (larges).

Autour de la résonance observée pour  $\eta_o$  vers 175 nm,  $\phi_o$  est proche de  $\pi/2$  – entre  $0,4 \pi$  et  $0,6 \pi$  pour des profondeurs comprises entre 130 et 200 nm. On retrouve donc le comportement observé avec des groupes de cinq sillons, pour lesquels on obtenait une interférence constructive sur l'axe optique pour les sillons situés à des distances de  $(n + 3/4)\lambda_s$  de la fente. Ici encore, il est important, pour réaliser des structures efficaces, de connaître précisément le comportement de la phase intrinsèque du champ diffracté en fonction de la géométrie du sillon, dont dépend la figure d'interférence obtenue en champ lointain.

Nous avons jusqu'ici considéré que les diagrammes d'émission de chaque motif étaient angulairement isotropes, ce qui se traduit par une amplitude de modulation constante selon  $\theta$ . Les prochaines mesures présentées montrent que cette approximation n'est plus valide pour des

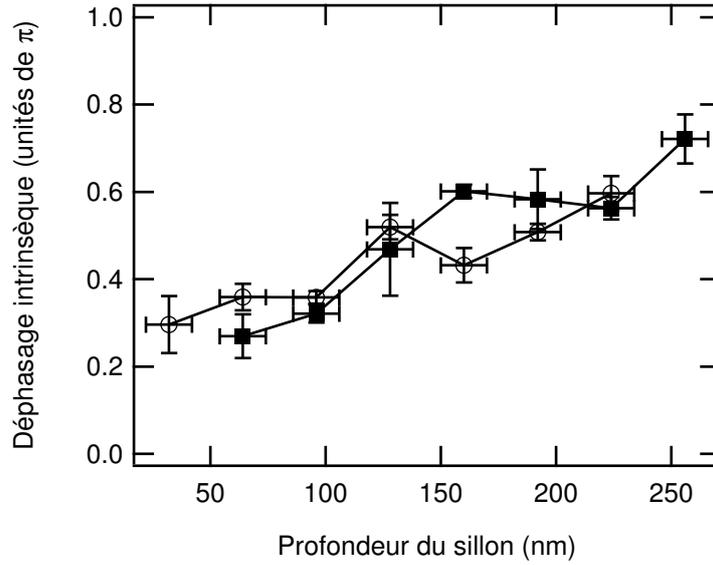


FIG. 4.17: Phase intrinsèque de l'onde diffractée en fonction de la profondeur des sillons pour deux largeurs différentes.

profondeurs de sillon importantes.

#### 4.5.4 Asymétrie du diagramme d'émission

Dans le cas des sillons larges (415 nm) et profonds (entre 150 et 250 nm), il apparaît clairement une asymétrie dans la figure d'interférence. Les distributions angulaires d'intensité de structures comportant des sillons de  $b \times h = 415 \times 224 \text{ nm}^2$  sont données sur la figure 4.18. Le contraste des oscillations d'intensités augmente quand  $\theta$  varie de  $-\pi$  et  $\pi$ .

Pour tenir compte de cette variation angulaire de l'amplitude de modulation, on doit considérer une dépendance de  $\eta_o$  avec l'angle d'observation. On écrira donc au premier ordre :

$$\eta_o(\sin \theta) = \eta_o(0) + \eta_1 \sin \theta \quad (4.17)$$

Avec cette hypothèse, on déduit par ajustement la valeur de  $\eta_1$ . On n'observe pas de variation systématique de  $\eta_1$  en fonction de la distance fente-sillon  $x_g$  pour une série de structures donnée.

Les valeurs moyennes de  $\eta_1$  pour chaque série de structures à sillon large sont rapportées sur le graphique de la figure 4.19 en fonction de la profondeur du sillon.

Ce paramètre est croissant avec la profondeur du sillon pour les profondeurs étudiées. En trait plein sur le graphe 4.19, une fonction quadratique  $\eta_1 = \sigma h^2$ , manifestement mieux adaptée qu'une variation linéaire, a été ajustée aux points expérimentaux, pour rendre compte de cette variation. On obtient  $\sigma \simeq 6,3 \cdot 10^{-6} \text{ nm}^{-2}$ . Ainsi, pour des sections de sillons importantes (comparables à  $\lambda^2$ ), le diagramme d'émission présente un maximum dans le plan de l'échantillon, dans la direction de la fente source, c'est-à-dire en  $\sin \theta = 1$  sur le graphique de la figure 4.18.

A notre connaissance, il n'existe pas de description théorique de cette observation. Il pourrait être intéressant de s'appuyer sur cet effet de directionnalité du diagramme d'émission dans le cadre d'applications à la génération de pièges dipolaires.

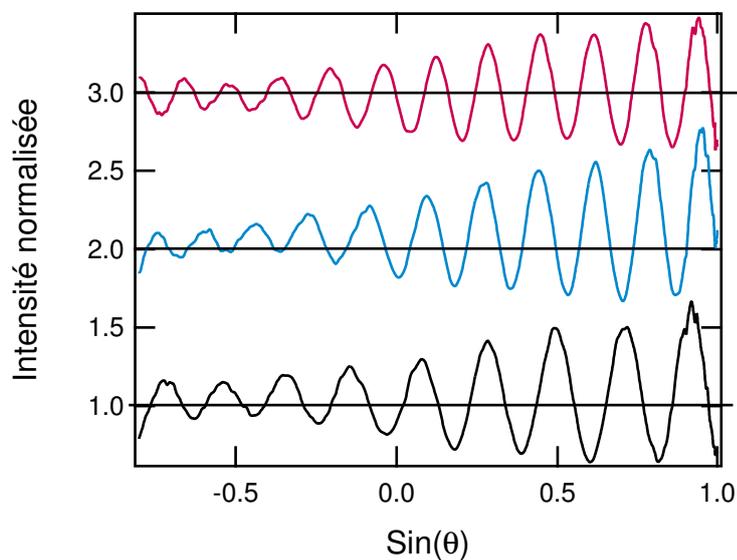


FIG. 4.18: Diagramme d'émission normalisé de sillons de  $415 \times 224 \text{nm}^2$ . De haut en bas,  $x = 5,40$ ,  $4,98$  et  $4,15 \mu\text{m}$ .

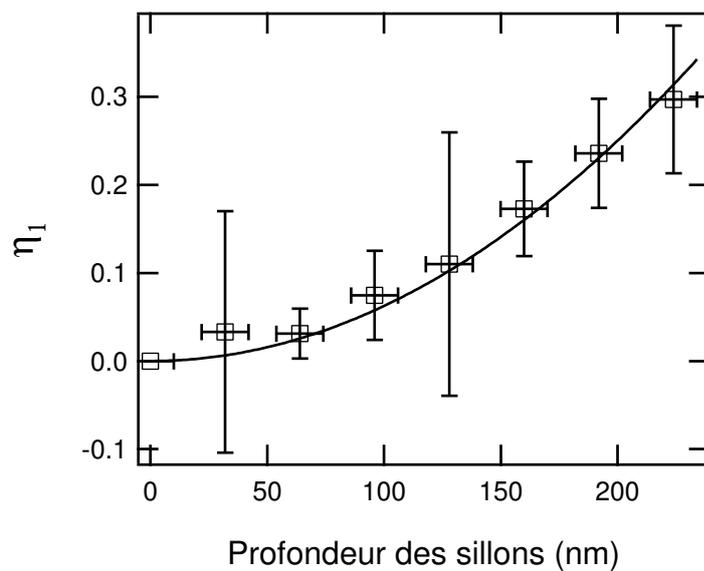


FIG. 4.19: Asymétrie en fonction de la profondeur des sillons – sillons larges.

## 4.6 Conclusion

Nous avons décrit dans ce chapitre nos études de structures sub-longueur d'onde simples constituées d'une fente ou d'un trou de section circulaire et d'un sillon. Les franges d'intensité observées en face d'entrée et les figures de diffraction en face de sortie peuvent être interprétées dans un modèle phénoménologique en considérant chaque motif comme une source d'un champ radiatif et d'un champ évanescent guidé à l'interface.

Le champ évanescent issu de l'un des motifs se propage sur la surface avec une constante de propagation  $k_s = n_s k_0$ . Lorsqu'il rencontre un autre motif, ce champ est couplé à un champ radiatif. Les mesures effectuées ne permettent pas de savoir quelle fraction du champ incident est converti en champ de surface, et quelle fraction de ce champ est ensuite transformée en champ radiatif. Nous avons cependant accès au produit de ces deux coefficients, qui est de l'ordre de 20 % de l'amplitude du champ radiatif transmis par la fente seule. On a vu que cette amplitude dépendait de la distance fente-sillon et de la géométrie du sillon. L'amplitude du champ diffracté décroît de manière monotone en fonction de  $x$ . Cette décroissance peut être décrite par une fonction à deux composantes : un terme constant dans la gamme de distance considérée, et un terme rapidement décroissant, sur une distance typique de 1  $\mu\text{m}$ . Il n'y a pas d'indication d'une réflexion importante du champ de surface sur le sillon, on peut donc considérer en première approximation que la variation d'amplitude observée correspond à la variation d'amplitude du champ de surface émis par la fente. L'amplitude du champ diffracté dépend en outre de la profondeur du sillon, et on observe un maximum de ce terme pour une profondeur de l'ordre de  $\lambda/4$ , qui peut correspondre à un effet de cavité dans le sillon.

De même, nous ne pouvons pas mesurer directement le retard de phase associé à chaque étape du processus de diffraction, mais la somme de ces retards de phase. Une composante de ce déphasage varie linéairement avec  $x$  dans la limite de notre précision expérimentale. En extrapolant cette différence de phase à une distance nulle, on mesure une différence de phase intrinsèque, qui dépend de la géométrie du sillon, et est proche de  $\pi/2$  lorsque la profondeur du sillon est optimale.

### Comparaison aux modèles

La confrontation du modèle CDEW aux observations expérimentales a servi de guide à cette étude, et nous a poussé à étudier les structures présentées ci-dessus. Tel qu'il est présenté dans l'article de H. Lezec et T. Thio [37], ce modèle ne décrit cependant pas correctement le comportement du champ de surface pour un métal. Ce modèle souligne toutefois l'origine interférentielle de la construction du champ lointain, ce qui est important dans la description du comportement des ouvertures décorées qui nous intéressent. Les modèles décrivant la diffraction par la fente en termes de couplage du mode fondamental de l'ouverture à un plasmon polariton de surface, tels que celui proposé par Ph. Lalanne *et al.* [61], ont semblé plus à même de reproduire nos observations. Cependant, l'indice théorique d'un plasmon polariton de surface, qui apparaît dans ce modèle est en désaccord avec l'indice de réfraction mesuré à la surface. Des simulations FDTD de nos expériences sont actuellement menées par M. Sukharev à l'Université de Northwestern et nous poursuivons nos expériences par une caractérisation précise de la composition chimique des films d'argent et par des mesures sur des films d'or pour comprendre l'origine de ce décalage. Nous avons aussi constaté que la distribution angulaire d'un sillon

unique pouvait être asymétrique. Il serait intéressant de comprendre l'origine de ce phénomène pour éventuellement le mettre à profit dans le dessins de structures appliquées à la réalisation de pièges dipolaires.

# Conclusion générale

Dans la première partie de cette thèse nous avons d'abord décrit le dispositif expérimental de jet atomique refroidi par mélasse optique développé dans notre équipe de recherche. Nous avons obtenu une divergence résiduelle inférieure à 1 mrad et un flux de  $1,6 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$ .

Ce jet de césium a été employé dans des expériences de nano-lithographie atomique sur des mono-couches moléculaires auto-assemblées. Nous avons caractérisé les cinétiques des différentes étapes du procédé de gravure, puis nous avons étudié l'utilisation de deux types de masques nanométriques. Avec des masques pyramidaux gravés dans une galette de silicium, nous avons obtenu des trous de section circulaire de 280 nm diamètre et 40 nm de profondeur gravés sur le substrat d'or, avec un temps d'exposition du substrat au jet de césium de 15 minutes. Ce temps est encore trop long pour prétendre appliquer ce dispositif à la réalisation de motifs arbitraires. Pour améliorer ces performances, il peut être intéressant de coupler des champs optiques à ces ouvertures. Avec une forme de champ bien choisie, on pourrait ainsi collecter les atomes incidents et les guider à travers l'ouverture, ou au contraire les empêcher de traverser en modifiant le désaccord du champ lumineux.

La deuxième partie a été consacrée à l'étude d'éléments optiques candidats pour de telles expériences, les ouvertures sub-longueur d'onde dans des films métalliques. Nous avons exposé dans le premier chapitre les différents modèles décrivant la diffraction de la lumière par des structures sub-longueur d'onde. Après un rappel du comportement d'un champ électromagnétique évanescent à une interface métal/diélectrique plane, et de la notion de plasmon polariton de surface, les différentes descriptions de la transmission de la lumière par une ouverture – fente ou trou – unique dans un film métallique ont été présentées. Dans le cas du réseau d'ouvertures examiné ensuite, les champs évanescents aux interfaces et les modes de cavités sont impliqués dans les effets collectifs de transmission exaltée ou supprimée de la lumière. Ces effets sont bien décrits par une analogie avec la mécanique quantique : la description en termes de couplage des modes “piégés” dans le réseau aux champs radiatifs dans le diélectrique permet d'obtenir une forme générale décrivant les différentes caractéristiques spectrales observées. C'est aussi en termes de couplage que peut être décrite la réponse optique de structures comportant des décorations espacées périodiquement autour d'une ouverture sub-longueur d'onde. Ces motifs permettent de reconverter une partie du champ évanescent créé par la diffraction à travers l'ouverture en champ radiatif. Ces sources secondaires interfèrent pour produire un faisceau collimaté dans le demi-espace de sortie.

Nous avons ensuite présenté les différentes expériences réalisées par notre équipe avec des structures de ce type. Dans le deuxième chapitre, une méthode de cartographie du champ optique à des échelles micrométriques de la surface a été démontrée. Nous avons vu quelles étaient les conditions à respecter pour obtenir une mesure fidèle de la distribution spatiale d'intensité. Les limitations rencontrées dans l'application de cette méthode sont essentiellement techniques, et son amélioration pour atteindre une résolution de  $1 \mu\text{m}$  est tout à fait accessible. Ces premières expériences d'interaction entre les champs optiques issus d'ouvertures sub-longueur d'onde et des atomes ont ensuite été complétées par une étude systématique des propriétés du champ lointain transmis par des structures simples, rapportée aux chapitres 3 et 4. La mesure des figures d'interférences de doublets fente-sillon de différentes géométries nous ont permis d'étudier les propriétés du champ de surface créé par ces structures. Nous avons proposé un modèle phénoménologique permettant d'analyser ces mesures et d'en déduire les propriétés du champ évanescent. Celui-ci peut être décrit comme un mode guidé à l'interface et se propageant avec un indice effectif de 1,05, significativement différent de la valeur théorique

---

pour un plasmon polariton de surface. L'origine de ce désaccord n'est pas encore clarifiée. Nous avons aussi constaté que la phase et l'amplitude du champ diffracté par le sillon dépendaient de la géométrie de celui-ci. Cette amplitude est maximale pour des sillons de 175 nm de profondeur, le retard de phase intrinsèque étant alors proche de  $\pi/2$ .

Les objets très simples étudiés ici montrent déjà un comportement complexe. Cette richesse peut être exploitée pour créer des champs optiques non conventionnels au voisinage des surfaces. La motivation première de cette étude était l'application de ces éléments optiques à la génération de pièges dipolaires pour les atomes froids. Nous pensons que ces expériences sont encourageantes pour ce projet. La grande fiabilité des méthodes de fabrication est très positive : il est possible de graver des motifs arbitraires sur des distances de plusieurs dizaines de micromètres avec une précision spatiale absolue remarquable. Dès lors, même si l'intensité transmise peut varier de quelques pour-cent pour deux structures identiques, la figure d'interférence obtenue est bien reproductible. Si les structures étudiées, particulièrement les ouvertures uniques entourées de groupes périodiques de sillons, ont un taux de transmission faible, l'optimisation des différents paramètres doit permettre des taux de transmission plus importants tout en s'appuyant sur les propriétés du champ proche. Cela suppose de trouver un équilibre optimal entre la taille des ouvertures et les fractions relatives de champs radiatifs et évanescents transmis. Par rapport à des structures d'optique diffractive classiques, les ouvertures sub-longueur d'onde nous semblent intéressantes pour le degré de liberté supplémentaire offert par la possibilité de distribuer des sources secondaires de champs homogènes issues du champ évanescent à l'interface. Le modèle très simple donné ici peut servir à simuler le champ lointain obtenu pour des structures plus complexes que celles étudiées ici.

À partir du piège magnéto-optique en miroir qu'il a développé, O. Alloschery a réalisé récemment des expériences de piégeage d'atomes froids à partir de champs créés par des éléments d'optique diffractive gravés sur un miroir métallique. Cette première étape devrait être bientôt suivie du piégeage par des champs issus d'ouvertures sub-longueur d'onde. La conception de ces structures est en cours.



# Annexe A

## Modulation de la densité atomique par masque optique

### A.1 Introduction

Du fait des contraintes associées au programme de recherche européen Nanocold, les expériences présentées ici n'ont pas pu être menées à leur terme et n'ont fait l'objet d'aucune publication. Nous avons cependant tenu à en rendre compte, pour mémoire, dans ce rapport. .

Comme on l'a vu au chapitre 1, à un gradient d'intensité laser correspond un gradient de potentiel pour les atomes (voir le paragraphe 1.3.2). Cet effet permet de modifier la trajectoire des atomes à l'aide d'un champ optique. Dans le cas d'un jet atomique, on peut faire une analogie entre les trajectoires atomiques dans la potentiel dipolaire et l'optique géométrique : les trajectoires atomiques (dans l'approximation semi-classique) sont analogues à des rayons lumineux, et un gradient de potentiel dipolaire est analogue à un gradient d'indice pour l'optique géométrique. On parle alors d'optique atomique (plus généralement d'optique particulière). Quel est l'équivalent en optique atomique d'une lentille convergente en optique classique ? Une lentille à gradient d'indice vérifie la relation de conjugaison  $1/p + 1/p' = 1/f'$  si l'indice varie quadratiquement avec la distance à l'axe optique. Ceci correspond à une variation quadratique de potentiel pour les trajectoires atomiques. Or l'intensité d'une onde stationnaire produite par la rétro-réflexion d'un faisceau laser varie comme  $\sin^2 kx$ . Au voisinage d'un nœud de cette onde, l'intensité – et le potentiel dipolaire – varient quadratiquement par rapport à  $x$  et les trajectoires atomiques qui traversent l'onde stationnaire convergent vers le point focal de lentille ainsi créée. Cette focalisation par onde stationnaire peut être employée pour concentrer les atomes d'un jet. Cette méthode, proposée en 1988 par V. Balykin [99], a déjà permis la réalisation de motifs périodiques par lithographie avec des gaz rares métastables [16] ou des alcalins [100] ou par dépôt direct, avec des atomes de chrome [101], d'aluminium [102] ou de sodium [103]. On peut se rapporter à ce sujet à la revue très complète de J. McClelland [7].

Les masques optiques, formés par une onde stationnaire et plus généralement par toute figure d'interférence, présentent plusieurs avantages et un inconvénient quand on les compare aux masques matériels. Premier avantage, les masques optiques ne se bouchent pas ! Il n'ont donc pas une durée de vie limitée, et peuvent être soumis à un flux atomique arbitrairement élevé. Deuxièmement, ils sont contrôlables : les paramètres du faisceau laser employé permettent

d'ajuster les caractéristiques du masque (par exemple la longueur focale comme on le verra dans le cas de la lentille en onde stationnaire). La forme du masque est déterminée par les motifs d'interférence (c'est-à-dire holographiques) que l'on peut réaliser, et présente une très bonne régularité sur des dimensions microscopiques, grâce à la cohérence des sources lasers. Mais cette richesse de formes s'accompagne d'un inconvénient : la taille des motifs réalisables est limitée par la longueur d'onde du laser employé pour créer le piège. On arrive à descendre à quelques fractions de cette longueur d'onde<sup>44</sup>, soit environ cent nanomètres, à comparer aux performances de la micro-électronique moderne (quelques dizaines de nanomètres).

Pour étudier les propriétés d'un masque donné, on recourt généralement soit au dépôt direct, pour des espèces stables à l'air, soit à des méthodes de lithographie, comme celle exposée dans le chapitre 4. Dans les deux cas, il est nécessaire de sortir la surface exposée du système de vide pour étudier les effets du masque. D'une part ces méthodes de caractérisations sont longues, et elles ne donnent, d'autre part, qu'une information indirecte sur la distribution de densité produite par le masque. Nous avons cherché ici à démontrer la faisabilité d'une détection optique de la densité d'atomes dans le jet. Dans le cas d'une focalisation par un faisceau laser rétro-réfléchi, la modulation périodique à  $\lambda/2$  ne peut pas être résolue par imagerie de fluorescence, du fait de la limite intrinsèque de résolution. Mais si on emploie comme nappe de fluorescence un faisceau laser lui aussi rétro-réfléchi, donc modulé à la même période que le faisceau de focalisation, on peut *démoduler* la distribution de densité atomique dans le jet, en modifiant la phase relative de la détection et de la modulation de densité. Ceci fournit donc une méthode de caractérisation *in situ* de la distribution de densité atomique. Pour obtenir une preuve de principe de cette méthode, nous avons réalisé des expériences de focalisation par une onde stationnaire de période macroscopique (200  $\mu\text{m}$ ). On a pu dans ce cas comparer les observations par détection directe et par démodulation de la distribution de densité atomique. Après une présentation théorique du principe de focalisation d'un jet atomique par potentiel dipolaire (section A.2), nous précisons les conditions expérimentales de la focalisation du jet (section A.3), et les résultats de nos expériences de démodulation (section A.4). Ces expériences n'ont malheureusement pas été poursuivies jusqu'à la réalisation d'une modulation par un faisceau rétro-réfléchi, en raison des contraintes temporelles imposées par notre programme de recherche. Après ces premières expériences, nous nous sommes orientés vers l'étude des masques matériels et des résines moléculaires exposée au chapitre suivant. Nous donnons cependant à la fin de ce chapitre quelques pistes pour la poursuite de ces expériences.

## A.2 Focalisation par onde stationnaire

### A.2.1 Lentille optique

À partir de l'expression du potentiel de l'équation 1.19, on peut dériver les propriétés d'une lentille en onde stationnaire par un calcul classique des trajectoires atomiques dans ce potentiel. Dans l'approximation paraxiale, on peut obtenir une expression analytique de ces trajectoires. Cette section donne les principaux résultats de cette approche, en s'appuyant largement sur le travail de J.J. McClelland [105].

---

<sup>44</sup>Voir par exemple l'article de R. Gupta *et al.* [104], dans lequel les auteurs montrent qu'on peut obtenir une modulation de densité de période  $\lambda/8$ .

Pour qu'un traitement analytique soit accessible, on se place dans un régime où les atomes sont à l'équilibre avec le rayonnement en tous points de l'espace (adiabaticité). Ce qui suppose que les variations spatiales d'intensité selon  $z$  soient lentes par rapport à la distance parcourue par l'atome en un temps  $1/\Gamma$ , soit  $(v_z/I)(dI/dz) \ll \Gamma$ . On considère aussi que l'on peut négliger les modifications de trajectoires dues à l'émission spontanée (dans une onde stationnaire, la quantité de mouvement absorbée est nulle en moyenne). L'expression du potentiel se réduit alors à l'équation (1.21) que nous rappelons ici :

$$U = \frac{\hbar\delta_\omega}{2} \ln(1 + s) \quad (\text{A.1})$$

### Cas général

On peut suivre le mouvement d'un atome dans une lentille grâce aux équations classiques du mouvement, dans un potentiel périodique :

$$\frac{d^2r}{dt^2} + \frac{1}{m} \frac{\partial U(r,z)}{\partial r} = 0 \quad (\text{A.2})$$

$$\frac{d^2z}{dt^2} + \frac{1}{m} \frac{\partial U(r,z)}{\partial z} = 0 \quad (\text{A.3})$$

où  $z$  désigne la coordonnée de l'axe optique et  $r$  la distance radiale à cet axe (pour un problème de symétrie cylindrique). On peut bien sûr intégrer numériquement ces équations, mais avec quelques approximations une solution analytique est possible, qui permet de prédire assez simplement les propriétés d'une lentille donnée. En éliminant la variable temporelle grâce au principe de conservation de l'énergie (la force dipolaire est conservative) on peut réduire ces équations à une seule :

$$\frac{d}{dz} \left[ \left(1 - \frac{U(r,z)}{E_c}\right)^{1/2} \left(1 + r'^2\right)^{-1/2} r' \right] + \frac{1}{2E_c} \left(1 - \frac{U(x,z)}{E_c}\right)^{-1/2} (1 + x')^{1/2} \frac{\partial U(x,z)}{\partial x} = 0 \quad (\text{A.4})$$

Où  $E_c$  est l'énergie cinétique de l'atome en l'absence de champ laser, et  $x' = dx/dz$ .

On peut encore simplifier le problème avec l'approximation paraxiale : on considère des particules qui sont peu affectées par le potentiel et restent proches de l'axe optique, c'est à dire :

$$x' \ll 1, U(x,z)/E_c \ll 1 \text{ et } kx \ll 1 \quad (\text{A.5})$$

alors :

$$x'' + \frac{1}{2E_c} \frac{\partial U(x,z)}{\partial x} = 0 \quad (\text{A.6})$$

Cette équation possède souvent une solution analytique et permet de dériver les propriétés au premier ordre de la lentille étudiée, comme la longueur focale ou la position du plan focal pour une lentille épaisse, en fonction des paramètres externes comme le désaccord ou l'intensité laser pour une lentille par onde stationnaire (LOS).

Les résultats si-dessus sont généraux, on les applique maintenant au cas d'une LOS.

### Lentille en onde stationnaire

On considère un faisceau laser gaussien et elliptique se propageant selon l'axe  $x$ , le faisceau est collimaté. Les rayons en  $1/e^2$  sont notés  $\sigma_y$  et  $\sigma_z$ . Le faisceau est rétro-réfléchi pour former une onde stationnaire. La distribution d'intensité s'écrit

$$I(x, z) = I_0 \exp\left(-2\frac{z^2}{\sigma_z^2}\right) \sin^2 kx = I_0 g(z) \sin^2 kx \quad (\text{A.7})$$

On ne tient pas compte ici de la variation d'intensité selon  $y$ . Les variations spatiales selon cet axe sont en effet généralement lentes par rapport à celles de l'axe  $x$  : l'échelle de ces variations est de l'ordre de  $\lambda/4$  selon  $x$  et de quelques centaines de  $\mu\text{m}$  selon  $y$ .

Au voisinage d'un nœud de l'onde stationnaire, avec  $x' = x - x_0$ , où  $x_0$  est la position du nœud, le paramètre de saturation s'écrit :

$$s(x', z) = \frac{I_0 g(z)}{I_{sat}} \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + 4\delta_\omega^2} \quad (\text{A.8})$$

L'équation A.6 devient alors

$$\frac{d^2 x}{dz^2} + q^2 g(z) = 0 \quad (\text{A.9})$$

avec

$$q^2 = k^2 \frac{\hbar \delta_\omega}{2E_c} \frac{I_0}{I_s} \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + 4\delta_\omega^2} \quad (\text{A.10})$$

On distingue deux types de lentilles selon la position du plan focal – à l'extérieur (lentille mince) ou à l'intérieur (lentille épaisse) du faisceau laser.

On a une lentille mince si les trajectoires atomiques sont peu modifiées, une trajectoire parallèle à l'axe optique coupera alors celui-ci hors du faisceau laser. Le plan principal est situé en  $z = 0$ , sur l'axe du faisceau de focalisation et la longueur focale  $f$  est définie comme la distance  $z$  à laquelle les trajectoires atomiques coupent l'axe optique. On peut alors résoudre l'équation A.9 pour une trajectoire initialement parallèle à l'axe optique en  $z = -\infty$ . On obtient pour la longueur focale :

$$f = \left(\frac{2}{\pi}\right)^{1/2} \frac{1}{\sigma_z q^2} \quad (\text{A.11})$$

On voit que la distance focale est inversement proportionnelle à l'intensité laser, et directement proportionnelle à l'énergie cinétique des atomes.

Pour une lentille épaisse, il faut calculer numériquement la position du plan principal de la lentille dans le faisceau gaussien, qui dépend de l'intensité.

Ces résultats sont utiles pour obtenir rapidement les paramètres généraux de la lentille, et parce qu'ils apportent une image intuitive de son fonctionnement.

Pour un profil de vitesse plus réaliste (distribution de vitesse thermique, dispersion angulaire typique d'un faisceau refroidi transversalement), on peut calculer numériquement les trajectoires classiques, solutions des équations A.2 et A.3 pour un grand nombre de conditions initiales.

Nous avons vu comment prévoir les caractéristiques d'une lentille en onde stationnaire par des calculs simples. Comme en optique classique, les différents écarts d'une lentille en onde stationnaire par rapport à une lentille parfaite sont appelés les aberrations de la lentille, que nous allons maintenant détailler.

## A.2.2 Aberrations

### Limite de résolution

Les dimensions des lentilles sont toujours grandes devant la longueur d'onde de de Broglie atomique, la résolution limite est donnée par la limite de diffraction de la fonction d'onde, identique à celle donnée par l'optique conventionnelle :

$$d = \frac{0,88\lambda_{dB}f}{\sigma_y} \quad (\text{A.12})$$

où  $d$  est la largeur à mi-hauteur de la tâche focale. On a vu que  $\lambda_{dB}$  était inférieure au picomètre.

### Aberration chromatique

On a jusqu'ici considéré une classe de vitesse unique (à travers  $E_c$ ). Dans un dispositif expérimental réel, la distribution de vitesse du jet a une largeur non nulle. La modification des propriétés de la lentille en fonction de la vitesse de l'atome incident est assimilée à l'aberration chromatique en optique géométrique (l'énergie cinétique étant analogue à l'énergie  $h\nu$  d'un rayonnement). La résolution numérique de l'équation A.4, montre que la largeur de la distribution de vitesse n'a pas de conséquence "grave" sur la taille de la tâche focale.

### Aberration sphérique

Les aberration sphériques rendent compte de la dégradation de la focalisation lorsqu'on s'éloigne des trajectoires paraxiales, c'est-à-dire lorsque l'angle d'entrée dans la lentille par rapport à l'axe optique augmente. Il apparaît dans les simulations que les lentilles en onde stationnaires sont extrêmement sensibles à cet angle. Pour une focalisation par un faisceau rétro-réfléchi, la modulation de densité atomique disparaît pour des divergences supérieures à quelques milliradians. Une bonne collimation du jet atomique (moins de 1 mrad) est donc nécessaire dans les expériences de focalisation.

## A.3 Réseau de lentilles macroscopiques

Nous avons souhaité pouvoir observer optiquement la modification de la densité atomique par un potentiel lumineux périodique. C'est évidemment impossible dans le cas d'un faisceau rétro-réfléchi, de période  $\lambda/2$ . Nous avons donc mis en place un réseau de période macroscopique.<sup>45</sup> Il suffit pour cela de faire interférer deux faisceaux quasi-copropageants (voir la figure A.3). Si l'angle entre ces deux faisceaux est  $\theta$ , l'intensité selon l'axe  $x$  s'écrit :

$$I(x) = 4E_0^2 \sin^2(kz \sin \theta) = 4E_0^2 \sin^2(\kappa z) \quad \text{avec } \kappa = k \sin \theta \quad (\text{A.13})$$

La période peut donc être aussi grande que l'on veut.

Mais une grande période signifie aussi un gradient d'intensité faible, donc une force faible. Pour obtenir un effet de focalisation aux échelles macroscopiques, on doit donc utiliser un faisceau puissant et relativement proche de la résonance.

<sup>45</sup>Un des premières expérience de focalisation par onde stationnaire a été réalisée dans des conditions comparables par l'équipe de T.Pfau, voir l'article de T.Sleator *et al.* [106]

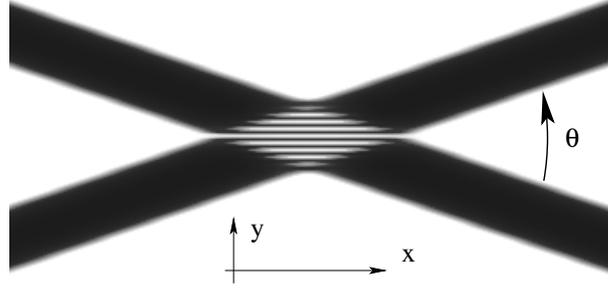


FIG. A.1: Vue schématique de la figure d'interférence de deux faisceaux co-propageants.

### A.3.1 Dispositif

Un réseau de lentilles de dimensions macroscopiques est naturellement décrite dans l'approximation de lentille mince. La longueur focale s'écrit alors :

$$f = \left(\frac{2}{\pi}\right)^{1/2} \frac{1}{\sigma_y q^2} \quad (\text{A.14})$$

Dans notre cas, cette équation peut s'écrire :

$$f[\text{cm}] = 9,33 \frac{\sigma_y \delta_\omega \kappa^2}{P} \quad (\text{A.15})$$

Où le rayon en  $1/e^2$   $\sigma_y$  est exprimé en mm, le désaccord  $\delta_\omega$  en GHz, la période du réseau en unités de 100  $\mu\text{m}$ , et la puissance  $P$  du faisceau propageant en unités de 100 mW. On a considéré une vitesse moyenne de 230  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  pour le calcul de  $E_c$ .

Cette équation donne une première idée des ordres de grandeurs des différents paramètres de l'expérience. Plusieurs contraintes doivent en outre être prises en compte dans la détermination de ces paramètres.

- Pour valider la méthode de détection par démodulation, on souhaite que les franges de modulation soient résolues par le système d'imagerie par fluorescence. Le grandissement de notre système d'imagerie est de 1,8. La résolution est limitée par la taille d'un pixel, 24  $\mu\text{m}$  réels, correspondant à un objet de 43,5  $\mu\text{m}$ . Ceci donne la limite inférieure de la taille des lentilles. Il faut quelques pixels par période pour pouvoir résoudre la modulation :

$$p_x = 2\pi/\kappa > 150 \mu\text{m} \quad (\text{A.16})$$

- La divergence résiduelle des atomes est estimée à 0,5 mrad (demi angle à mi-hauteur)<sup>46</sup>. Pour pouvoir observer une modulation, il faut que l'élargissement de la distribution de densité soit petite devant la période de modulation dans le plan focal. Soit :

$$f \cdot \theta_r \ll 2\pi/\kappa \quad (\text{A.17})$$

- La puissance accessible totale est limitée par le laser employé à environ 400 mW utiles. Le désaccord peut aller jusqu'à plusieurs dizaines de GHz. On préférera travailler à grand

<sup>46</sup>À l'époque où ont été réalisées ces expériences.

désaccord et grande puissance pour une focale donnée, de manière à diminuer le taux d'absorption. En effet, comme les deux faisceaux sont co-propageants, la pression de radiation dévie les atomes. Le couple  $(\delta_\omega, P)$  limite correspond à une déviation du jet par absorption dans la lentille plus grande que  $2\pi/\kappa f$ . Le taux d'absorption doit donc vérifier :

$$\rho_{fe} \ll \frac{v_0^2 m}{\hbar k 2\sigma_z \kappa f} \quad (\text{A.18})$$

Pour garder une certaine latitude dans les réglages de l'intensité et du désaccord, nous avons choisi de réaliser un réseau de lentilles optiques de période  $2\pi/\kappa = 200 \mu\text{m}$ , soit environ 5 pixels sur la caméra. L'écart angulaire entre les deux faisceaux co-propageants sera donc  $\theta = 0,852/200 = 4,26 \text{ mrad}$ . Avec cette période spatiale, la condition A.17 implique  $f \ll 40 \text{ cm}$ . En pratique, cela signifie que les faisceaux de focalisation devront passer par le même hublot CF63 pour éclairer le jet. Les contraintes d'encombrement impliquent alors d'avoir une focale de quelques centimètres.

On en déduit les conditions expérimentales pour obtenir une focale d'environ 5 cm :

Puissance du MOPA	200 mW par faisceaux
Désaccord	200 MHz
Taille du faisceau	$\sigma_z = 1 \text{ mm}, \sigma_y = 0,5 \text{ mm}$
Interfrange	200 $\mu\text{m}$
Focale théorique	4,7 cm

TAB. A.1: Conditions expérimentales

Pour obtenir une idée plus précise du résultat attendu pour cette gamme de paramètres, on réalise une simulation numérique des trajectoires atomiques dans ces conditions, en tenant compte de la distribution de vitesse du jet – considérée comme thermique, et de sa divergence résiduelle – modélisée par une distribution de vitesses transverses gaussienne de largeur  $10 v_r$ , soit une divergence angulaire de 0,15 mrad à mi-hauteur. On obtient la distribution de densité dans un plan  $(x, z)$  donnée dans la figure A.2.

Première observation, la latitude de mise au point est très grande, la modulation de densité variant lentement selon  $z$ . Deuxièmement, la position de la focale calculée pour un jet monocinétique dans l'approximation paraxiale ne correspond pas au maximum du contraste de modulation. Celui-ci est obtenu à une distance d'environ  $2f$  du faisceau de focalisation. On modifiera donc les conditions obtenues ci-dessus avec ce facteur d'échelle pour obtenir un maximum de contraste à 5 cm. Le contraste maximum mesuré dans cette simulation est de 70 %.

Le dispositif expérimental est décrit dans le schéma de la figure (A.3). La forme elliptique des faisceaux de focalisation est obtenue en plaçant deux prismes anamorphoseurs à la sortie du laser. Le faisceau est ensuite dédoublé en traversant une lame séparatrice à 50 %. La nappe de détection est prélevée sur le faisceau de refroidissement. Celui-ci est décalé de  $2\Gamma$  par rapport à la résonance. On utilise une puissance de quelques centaines de  $\mu\text{W}$ , de manière à rester dans le régime linéaire ; ce qui donne le meilleur rapport signal/fond et le meilleur contraste.

Pour obtenir un décalage en fréquence de plusieurs centaines de MHz, on ne peut pas utiliser le modulateur acousto-optique, limité à un décalage de 160 MHz s'il est monté en

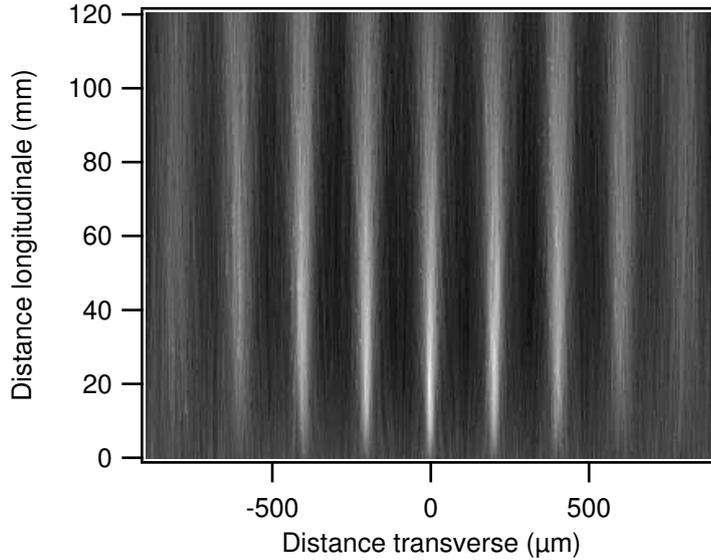


FIG. A.2: Simulation de la distribution de densité atomique dans le jet dans un plan  $(x,z)$  avec les conditions expérimentales données dans le tableau A.1.

double passage. On ne peut donc pas travailler avec un laser asservi. Le désaccord choisi est obtenu en boucle ouverte en appliquant une tension contrôlée sur le cristal piézo-électrique du MOPA. Cette tension est mise à zéro quand le laser est résonnant. Le facteur de conversion tension/fréquence est calibré avec la courbe d'absorption saturée. Les variations de fréquences du MOPA non-asservi sont de l'ordre de 10 MHz sur 10 secondes (temps de pose typique d'une acquisition). Pour des décalages de plusieurs centaines de MHz, et du fait de la dépendance linéaire du potentiel optique avec le décalage, on estime que cette stabilité est suffisante pour travailler.

### A.3.2 Résultats

Après optimisation des différents paramètres, on obtient une modulation de la distribution du césium à une distance centimétrique de la nappe de fluorescence. Une image par fluorescence de cette modulation et une coupe de cette image selon  $y$  sont données dans les figures A.4 et A.5. Les conditions expérimentales sont les suivantes :

Puissance du MOPA	200 mW
Désaccord	220 MHz
Taille du faisceau	$\sigma_z = 0,5 \text{ mm}, \sigma_y = 2,5 \text{ mm}$
Interfrange	250 $\mu\text{m}$
Focale théorique	2,9 cm

TAB. A.2: Conditions expérimentales

La détection est faite avec une nappe de détection de 1 mm selon  $z$  et 2 mm selon  $y$  (largeurs en  $1/e^2$ ), avec une puissance de 77  $\mu\text{W}$ . Le temps de pose est de 1 seconde.

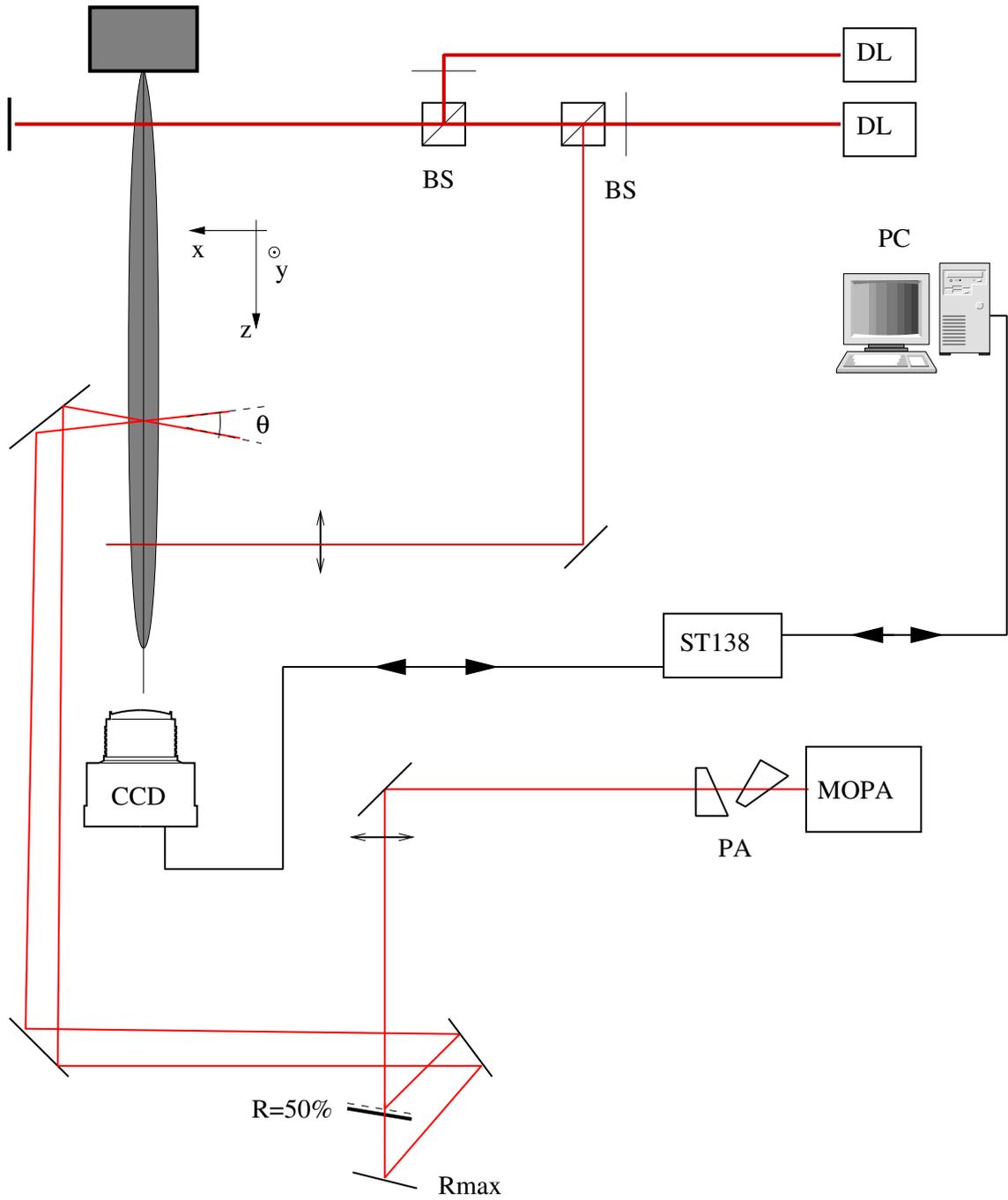


FIG. A.3: Dispositif expérimental de la focalisation par onde stationnaire

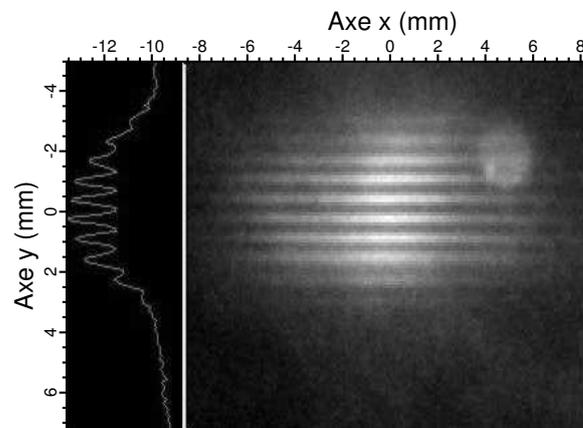


FIG. A.4: Image par fluorescence du jet atomique modulé par le réseau de lentilles optiques

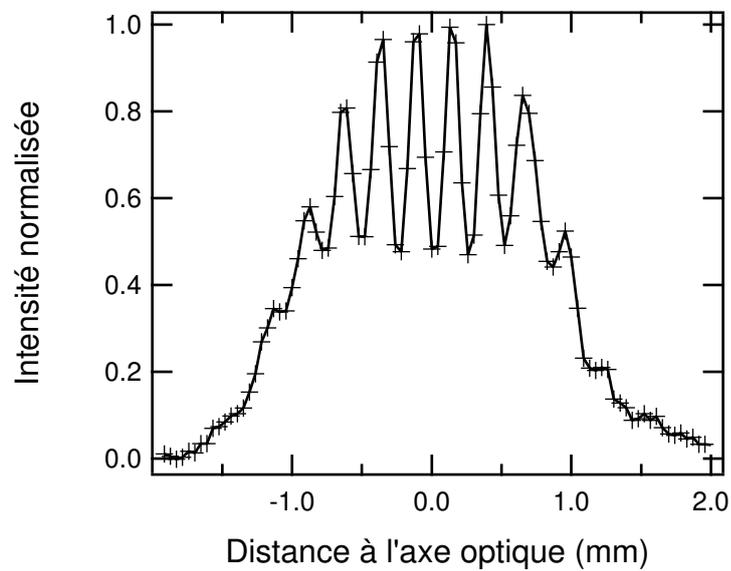


FIG. A.5: Coupe selon l'axe  $y$  de l'image par fluorescence dans le plan focal

Le contraste observé sur l'image par fluorescence est de 30 %, contre un contraste attendu dans les simulations de 70%. Cette différence est en partie due à la profondeur de champ finie du système d'imagerie et à une erreur d'alignement entre les plans nodaux de la modulation de densité et la direction de visée de la caméra. Le signal maximal est de 4000 coups par pixel pour un fond de 2000 coups par pixels. Ce fond provient des rayonnements de fluorescence induits par le masque en onde stationnaire et la mélasse optique. Le bruit est de l'ordre de 50 coups par pixels.

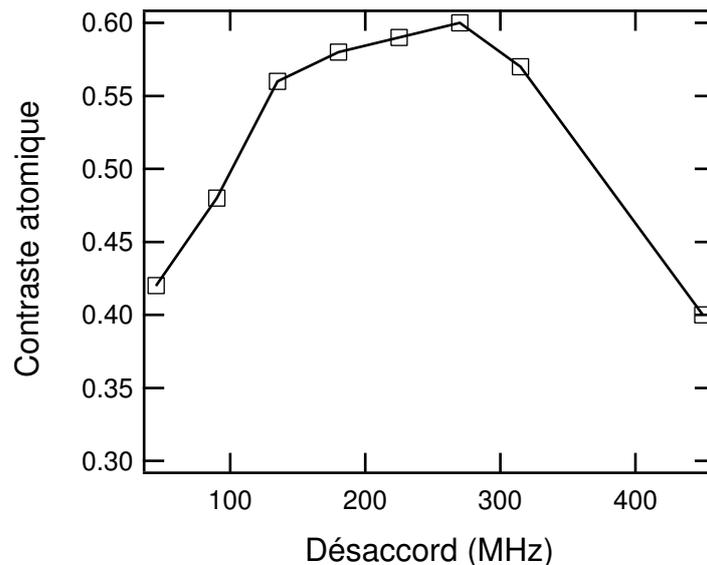


FIG. A.6: Variation du contraste de la modulation en fonction du désaccord de l'onde stationnaire.

## A.4 Détection par démodulation

Le méthode usuelle pour la caractérisation de la focalisation par onde stationnaire consiste à réaliser un dépôt direct (dans le cas d'éléments stables après remise à l'air, comme le chrome), ou à utiliser une méthode de lithographie sur un substrat. On réalise ensuite une image au microscope à force atomique du dépôt obtenu. Chaque dépôt demande donc un protocole de caractérisation long. En outre, dans le cas des méthodes de lithographie, le motif observé après révélation ne permet pas de déterminer de façon précise la distribution de densité atomique. Il est donc intéressant d'avoir une méthode de mesure *in situ* de la qualité de la focalisation.

Dans le cas d'un faisceau rétro-réfléchi, l'échelle de la modulation d'intensité est par définition sous la limite de diffraction. Les méthodes d'imagerie directes sont donc inaccessibles. Mais on peut contourner ce problème en modulant l'intensité du faisceau de détection, avec la même période que la modulation de densité atomique produite par la focalisation. En changeant la phase relative entre ces deux champs, on peut remonter à la distribution de densité atomique. Supposons que la distribution de densité atomique selon  $x$  soit modulée avec un contraste  $C$  dans le plan focal du réseau de lentilles, alors  $n(x) = n_0(1 + \sin(\kappa x))$ . On détecte cette modulation de densité avec une nappe de détection dont l'intensité  $I_d$  varie selon :

$I_d = I_{d0} \sin^2\left(\frac{\kappa x + \phi}{2}\right)$ . Le signal détecté, si l'intensité est petite devant l'intensité de saturation, est simplement proportionnel au produit  $n I_d$ , soit :

$$\begin{aligned}
S(x) &= A n_0 (1 + C \sin(\kappa x)) I_{d0} \sin^2\left(\frac{\kappa x + \phi}{2}\right) \\
&= A \frac{n_0 I_{d0}}{2} (1 + C \sin(\kappa x)) (1 - \cos(\kappa x + \phi)) \\
&= A \frac{n_0 I_{d0}}{2} [1 - \cos(\kappa x) + C \sin(\kappa x) - C \sin(\kappa x) \cos(\kappa x + \phi)] \\
&= A \frac{n_0 I_{d0}}{2} \left[1 + \frac{C}{2} \sin \phi - \cos(\kappa x + \phi) + C \left(\sin(\kappa x) - \frac{\sin(2\kappa x + \phi)}{2}\right)\right] \quad (\text{A.19})
\end{aligned}$$

où  $n_0$  est la densité dans le jet en l'absence de faisceau de focalisation. Dans l'équation A.19, on a un terme constant, deux termes haute fréquence, et un terme en  $\sin \phi$ . Ce dernier terme ne dépend pas de  $x$ . Le signal de fluorescence moyenné sur une période s'écrit :

$$\frac{\kappa}{2\pi} \int_{np}^{(n+1)p} (x) dx = A \frac{n_0 I_{d0}}{2} \left(1 + \frac{C}{2} \sin \phi\right) \quad \text{avec } p = \frac{2\pi}{\kappa} \quad (\text{A.20})$$

En faisant varier  $\phi$ , on obtient un signal sinusoïdal dont le contraste est égal à la moitié du contraste de la distribution de densité. Ce signal est indépendant de  $x$ , on s'est donc affranchi de la limite de résolution.

#### A.4.1 Dispositif expérimental

Dans l'expérience décrite ici, la période de 200  $\mu\text{m}$  de l'onde stationnaire permet une résolution optique de la modulation, et on peut en même temps appliquer la méthode de détection par démodulation.

La sonde modulée est obtenue en imageant dans le jet un réseau optique en transmission de même période que l'onde stationnaire. On vérifie au profileur de faisceau que le contraste de la sonde de démodulation est suffisamment proche de 1. On peut dans ce cas écrire  $I_d = I_{d0} \sin^2\left(\frac{\kappa x + \phi}{2}\right)$  en se limitant à la première harmonique. La figure A.7 donne une image du jet non modulé par cette sonde. On mesure ici un contraste de 90 %. La dégradation du contraste entre la distribution d'intensité laser et l'image provient ici encore de la profondeur de champ du système optique, et de l'erreur d'alignement entre les plans nodaux de la nappe de détection et la normale du plan image.

Un schéma de ce dispositif est donné dans la figure (A.9). Le déphasage spatial entre le jet et la sonde est contrôlé en déplaçant le réseau en transmission dans son plan. Ce déplacement est obtenu à l'aide d'un moteur pas-à-pas commandé par le contrôleur de la caméra, via un générateur de fonction. Après une acquisition, la fermeture de l'obturateur déclenche le générateur d'impulsion, qui envoie un train de  $n$  impulsions au moteur, qui tourne d'autant de pas.

#### A.4.2 Résultats

Le graphique de la figure A.10 montre la variation du signal de fluorescence intégré sur toute une image en fonction de la phase relative de la sonde de fluorescence. On obtient des oscillations avec un contraste de l'ordre de 10 %.

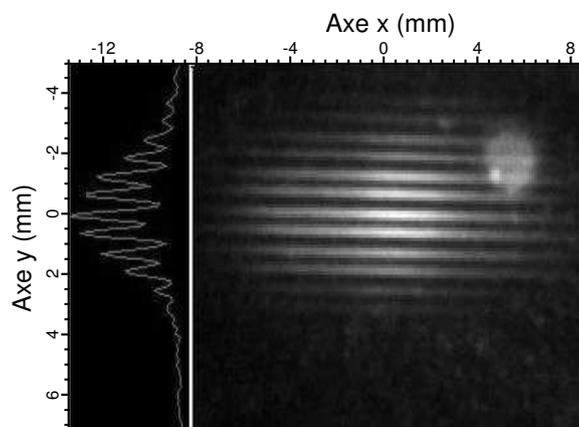
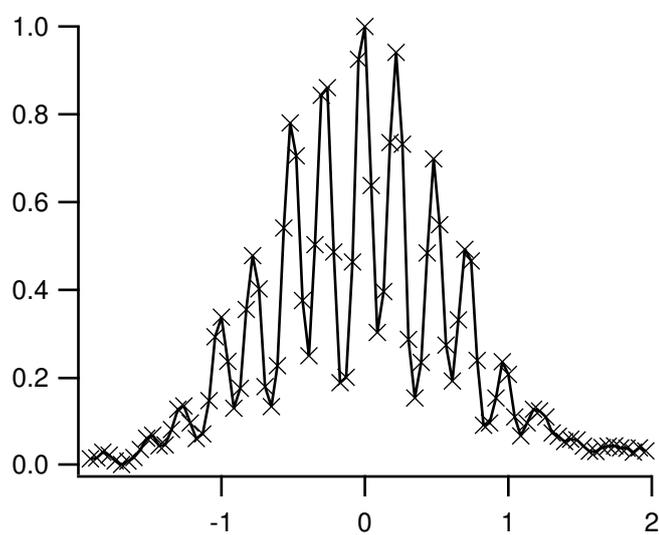


FIG. A.7: jet non modulé éclairé par la sonde modulée

FIG. A.8: Coupe selon l'axe  $y$  au centre de l'image de la figure A.7

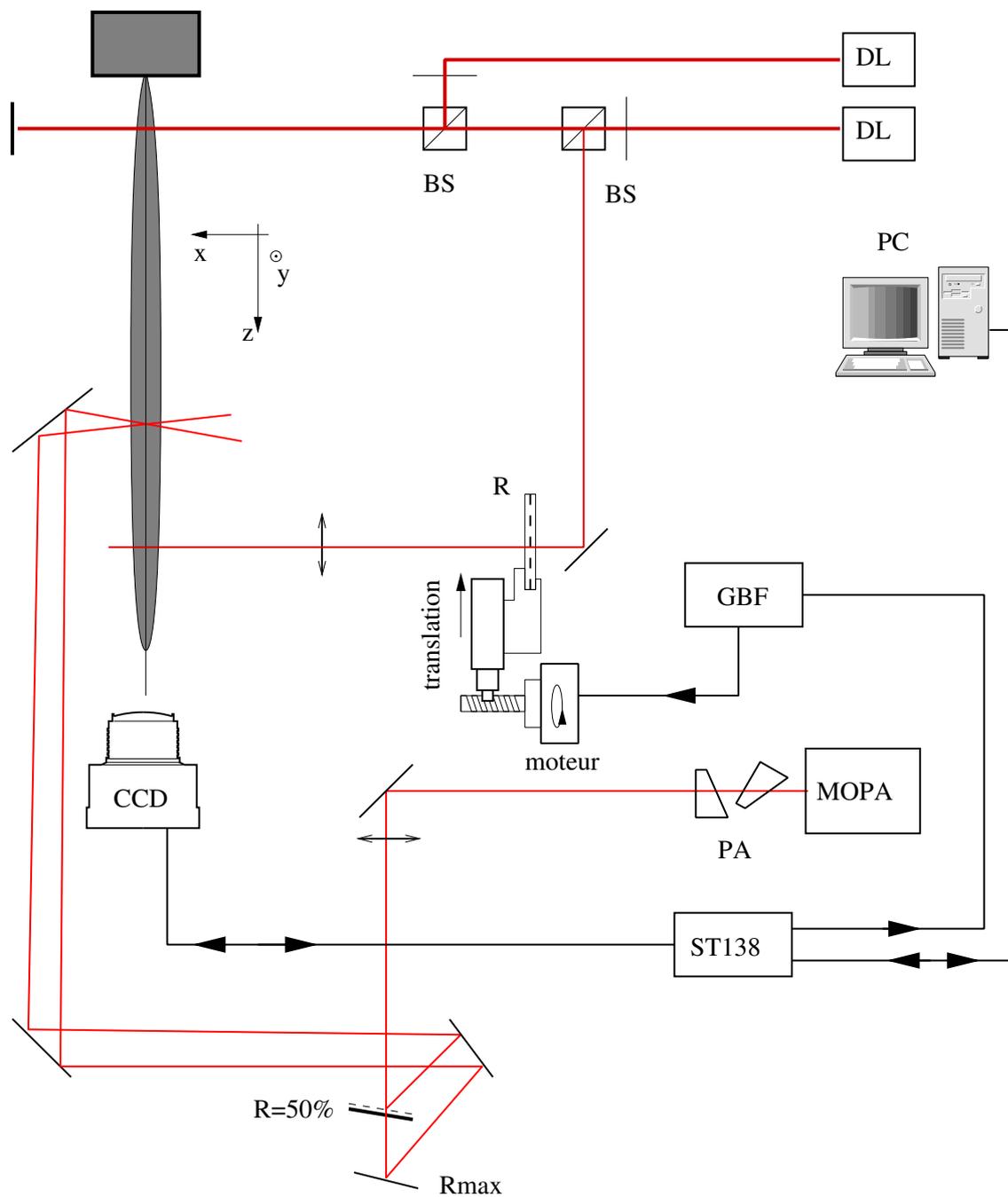


FIG. A.9: Dispositif expérimental de la détection par démodulation

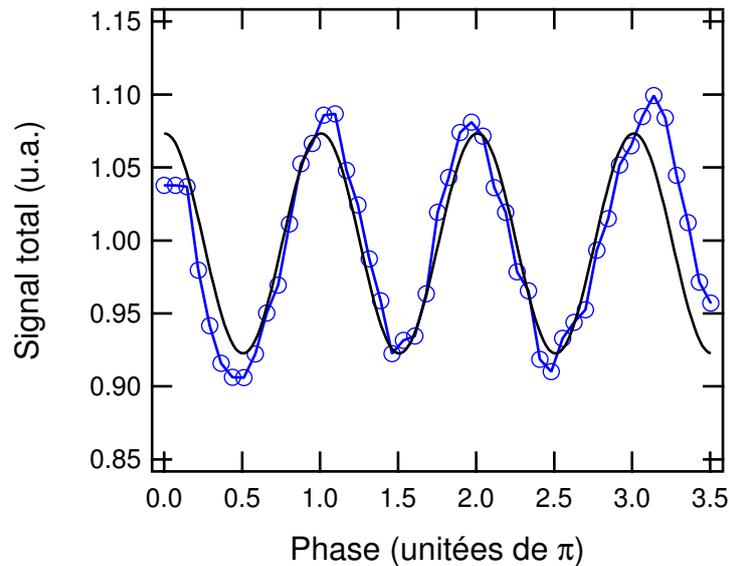


FIG. A.10: Signal de fluorescence total en fonction de la phase relative de la sonde

On peut comparer le contraste mesuré ici et le contraste de la distribution d'intensité mesuré par la détection directe.

Le graphe de la figure A.4.2 reprend la figure A.6 donnée à la section A.4 à laquelle on a superposé le contraste du signal de démodulation. La valeur moyenne du rapport des contrastes obtenu par imagerie directe et par démodulation vaut  $3,3 \pm 0,3$ , et le coefficient de corrélation entre ces deux courbes est 0,82.

Le calcul du contraste théorique (équation (A.20)) donne un rapport de 2 entre ces contrastes, et bien sûr un coefficient de corrélation de 1! La dégradation du contraste de démodulation provient de plusieurs sources :

- Un mauvais alignement entre les plans nodaux de la distribution atomique et de la sonde modulée
- Une différence de *forme* de la sonde et de la distribution d'intensité. Cette différence peut provenir d'une différence de période, qui correspond à la première harmonique des spectres de Fourier des deux distributions, ou à des termes d'ordres plus élevés.

Ce dernier point entraîne l'apparition de motifs de Moiré dans l'image démodulée, qui sont les principaux responsables de la réduction du contraste d'un facteur 0,6. On peut voir cette différence de forme en observant la transformée de Fourier spatiale des signaux de fluorescence du jet modulée et de la fluorescence de la sonde.

La figure A.12 donne les transformées de Fourier de la modulation de densité et de la modulation de la sonde obtenus par transformée de Fourier rapide (FFT) des coupes données sur les figures A.8 et A.5 . Le spectre de la modulation de densité est presque harmonique, avec un faible pic d'ordre 2, alors que la sonde présente des pic supplémentaires de fréquences  $\kappa/2$  et  $3\kappa/2$ .

Remarquons que ce problème ne se pose pas dans le cas d'une modulation par faisceau rétro-réfléchi, les deux ondes ayant alors exactement la même période spatiale.

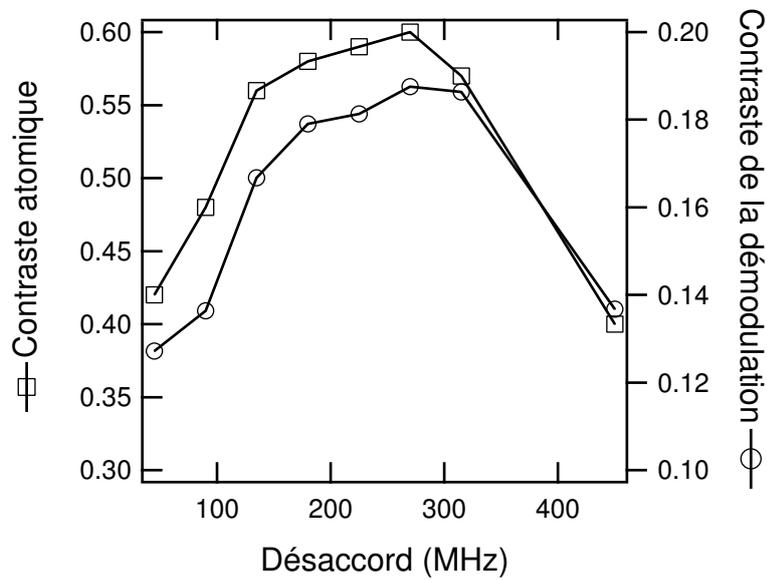


FIG. A.11: Contraste mesuré par détection directe et contraste du signal de démodulation pour différents désaccords

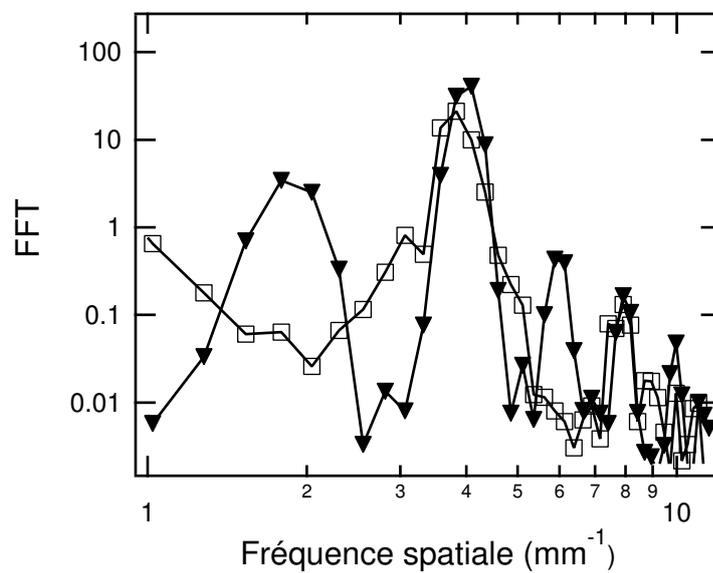


FIG. A.12: Amplitudes au carré des transformées de Fourier rapides des coupes données dans les figures A.8 et A.5. On observe un pic de période 1/2 dans le spectre de la sonde et un léger décalage de la période principale entre les deux spectres

## A.5 Perspectives

Nous avons démontré que la méthode de détection par démodulation permettait une mesure relative du contraste de la distribution de densité dans le jet dans le cas d'un réseau de lentilles macroscopiques. La suite logique à ces expériences est le passage à une modulation par un faisceau rétro-réfléchi. Pour les raisons exposées en introduction de ce chapitre, cette étude n'a pas été encore menée. On peut cependant exposer quelques étapes de sa réalisation.

### A.5.1 Gamme de paramètres

Dans l'article de J. McClelland *et al.* déjà cité [105], les auteurs donnent la relation entre la puissance du faisceau incident et le désaccord de l'onde stationnaire pour obtenir une focalisation du jet au milieu du faisceau gaussien, pour un désaccord grand devant la largeur de raie :

$$P_{\text{focus}} = 5,37 \frac{\pi m \bar{v}^2 I_{\text{sat}} \delta_\omega}{\hbar \Gamma^2 k^2} \quad (\text{A.21})$$

Avec les valeurs des différents paramètres, on obtient pour notre jet de césium :

$$P_{\text{focus}} [\text{mW}] = 8,4 \cdot 10^{-3} \delta_\omega [\text{MHz}] \quad (\text{A.22})$$

Soit par exemple une puissance 3,4 mW pour un désaccord de 400 MHz.

### A.5.2 Démodulation au premier ordre

On a donné ci-dessus les conditions pour obtenir une focalisation au milieu du faisceau laser. La nappe de détection doit donc être superposée à la nappe de focalisation. Comment changer alors leur phase relative ? Une méthode proposée consiste à employer deux polarisations linéaires perpendiculaires pour le faisceau de focalisation et le faisceau de détection. Après avoir traversé le jet, les faisceaux sont séparés par un cube polariseur placé devant les miroirs de rétro-réflexion (voir la figure A.13). Les nœuds du faisceau d'imagerie sont alors être déplacés par un cristal piézo-électrique placé sur le miroir de réflexion. On peut détecter la fluorescence du jet ou imager l'absorption dans la sonde. Cette dernière méthode pourrait avoir l'avantage de permettre une résolution spatiale de la modulation selon l'axe de propagation du jet.

### A.5.3 Méthodes plus avancées

La méthode présentée ci-dessus ne permet de détecter que le premier ordre de la modulation de densité dans le jet, et on peut voir dans les simulations que les motifs obtenus sont plus riches spectralement. Les atomes sont concentrés sur les points nodaux de la lentille, avec un rapport d'aspect de l'ordre de 10. Pour détecter plus finement la distribution de densité, on peut employer un faisceau d'imagerie saturé en intensité. La probabilité d'absorption des atomes dans l'onde stationnaire est alors déformée par la saturation. À très forte saturation, cette probabilité est maximale partout sauf sur les nœuds de l'onde stationnaire, où elle reste nulle. On a ainsi créé – à la limite d'une saturation infinie et d'un contraste unité – un peigne de Dirac de période  $\lambda/2$ , qui doit permettre de résoudre complètement la forme de la distribution

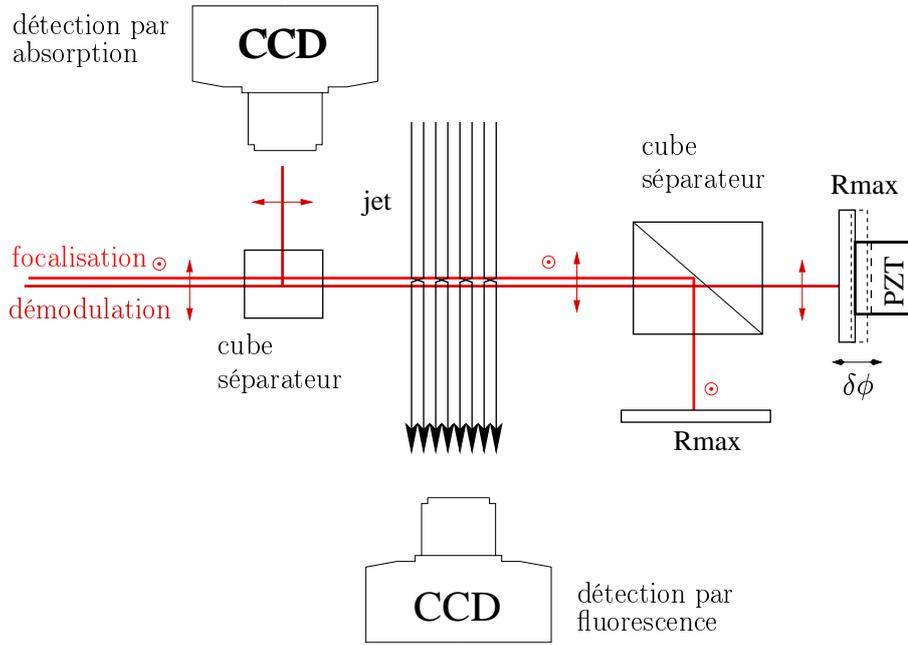


FIG. A.13: Méthode de démodulation proposée à  $\lambda/2$ . PZT : cristal piézo-électrique

de densité atomique, les minima de signal correspondant au cas où les maxima de densité sont superposés aux nœuds de l'onde stationnaire.

On peut aussi imaginer de remplacer la sonde par un faisceau de pompage optique dans le sous-niveau  $F = 3$ , le pompage optique n'étant négligeable que sur les nœuds de l'onde stationnaire. Dans cette configuration, on détecte plus loin les atomes restés dans  $F = 4$ .

#### A.5.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons donné les résultats d'expériences de focalisation du jet de césium par un réseau de lentilles créées par une onde stationnaire de période macroscopique. Nous avons obtenu un contraste de l'ordre de 30% pour la modulation de densité. Nous avons ensuite montré qu'il était possible de mesurer le contraste relatif de la modulation de densité indépendamment de la résolution spatiale du système d'imagerie en démodulant la densité dans le jet à l'aide d'un faisceau de détection modulé à la même période. Nous avons enfin discuté de l'application de cette méthode à des lentilles de période  $\lambda/2$ . Ces expériences ne se sont malheureusement pas poursuivies.

Nous nous sommes orientés, dans le cadre du programme de recherche européen Nanocold, vers l'étude de l'utilisation de masques matériels pour localiser les atomes de césium et réaliser des expériences de lithographie.

# Annexe B

## Asservissement des lasers

### B.1 Démodulateur

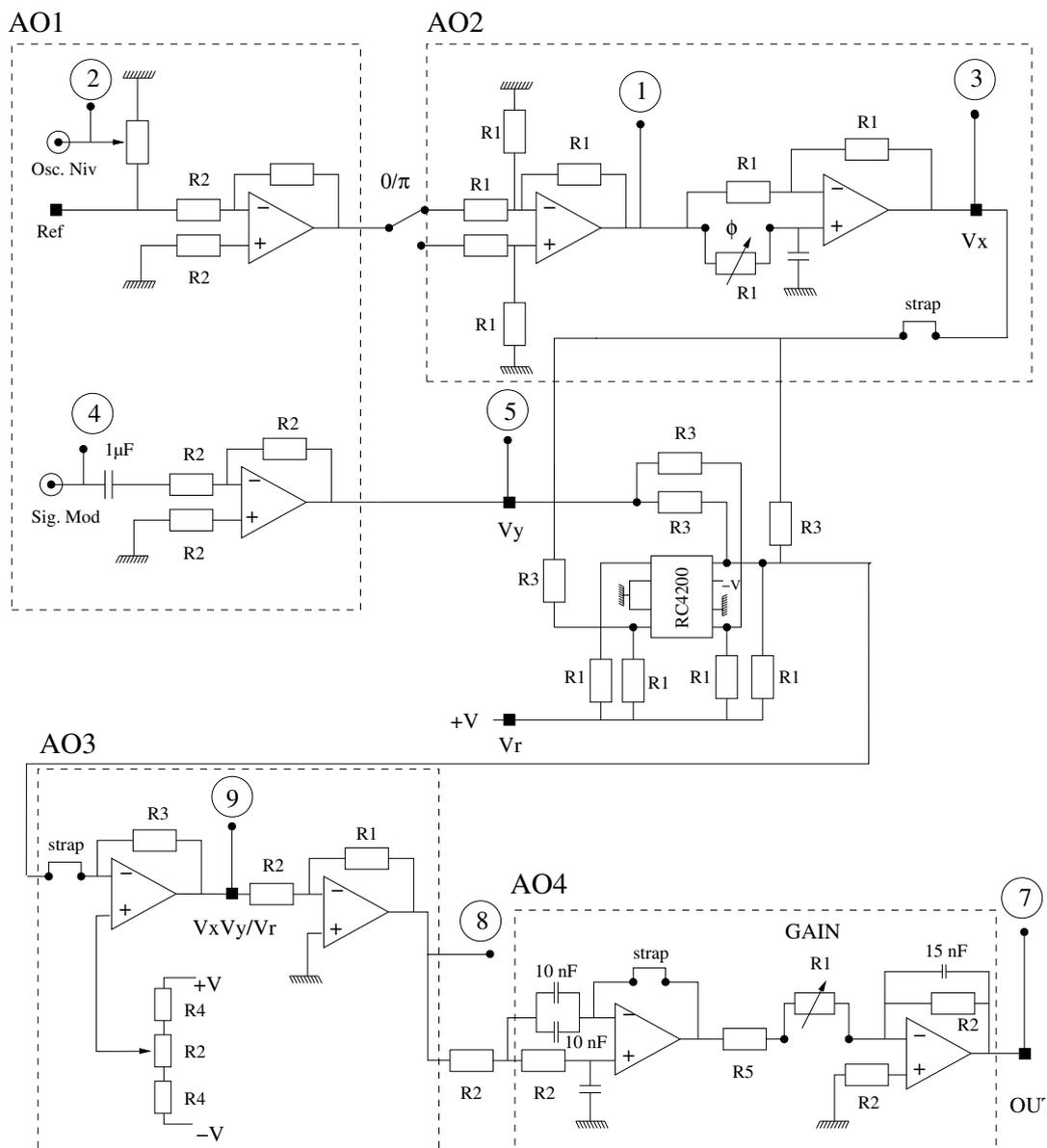


FIG. B.1: Circuit du démodulateur

## **B.2 Correcteur**

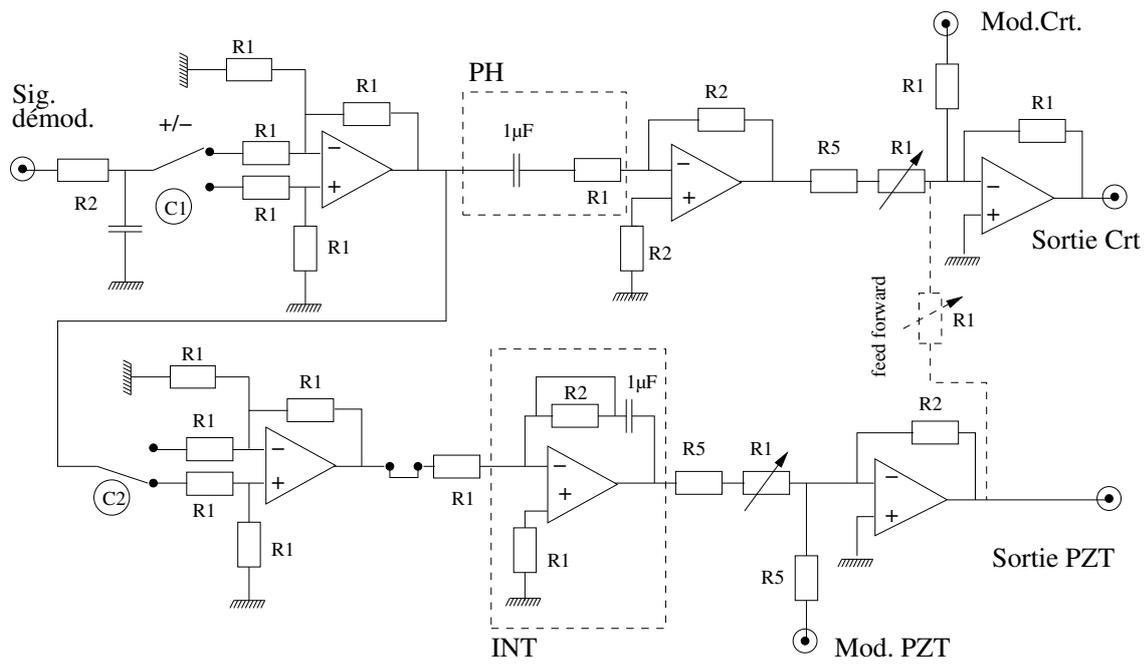


FIG. B.2: Circuit du correcteur

## B.3 Balayage

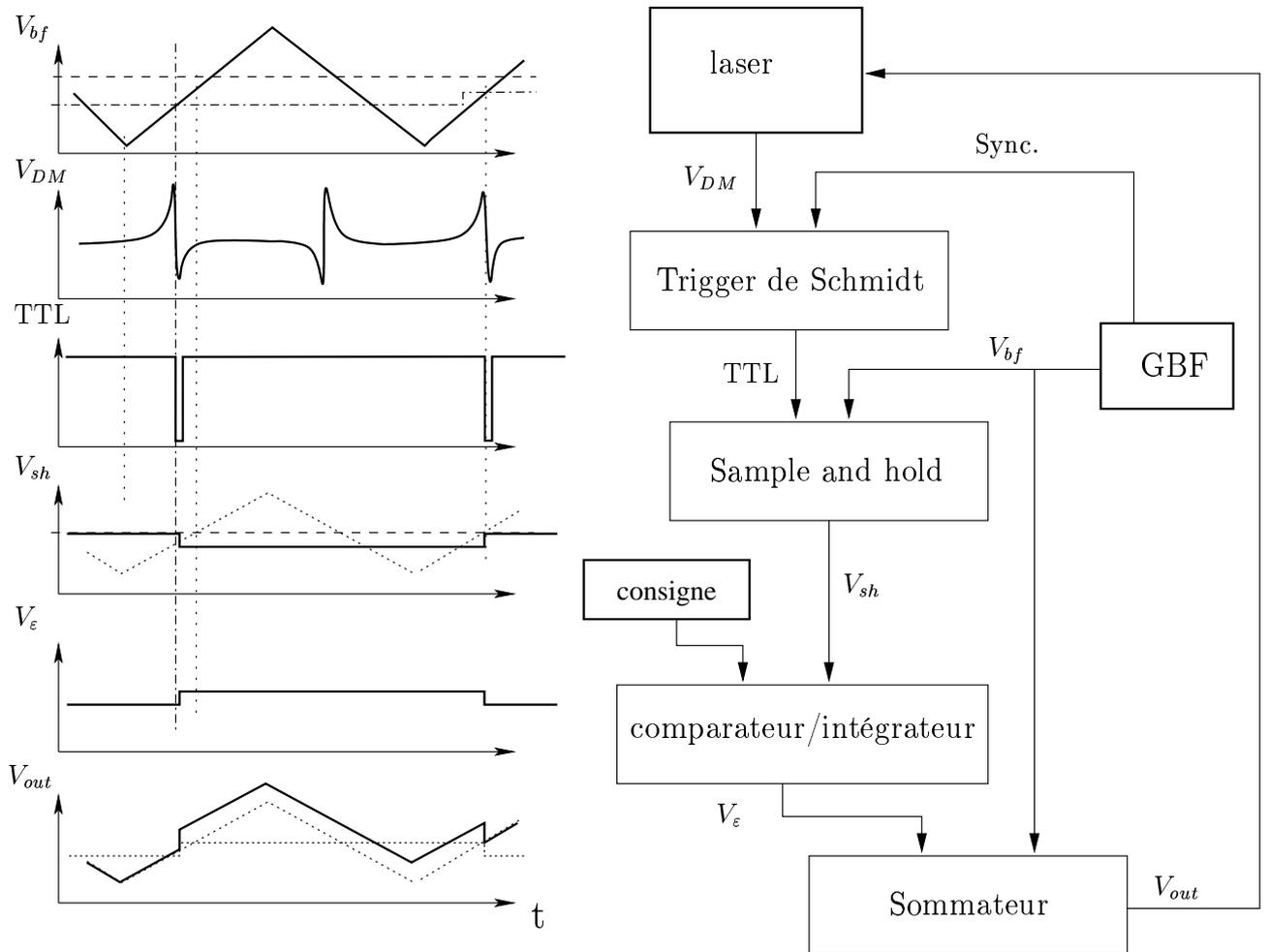


FIG. B.3: Schéma de principe de l'asservissement utilisé pour balayer la fréquence du laser.



# Annexe C

## Jet

### C.1 Contrôle de température du four

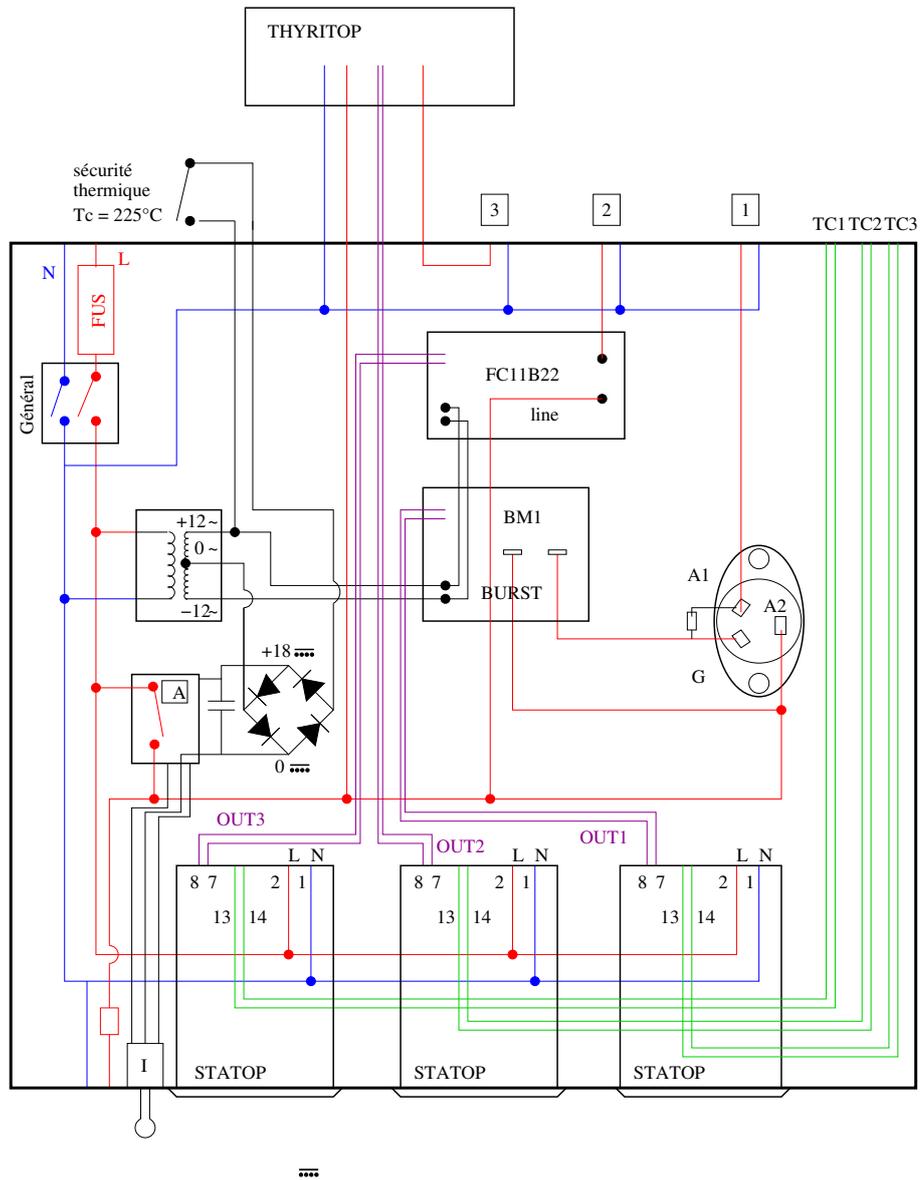


FIG. C.1: Boîtier de contrôle de la température

# Annexe D

## Quelques données sur l'atome de césium

### D.1 Grandeurs fondamentales

	Symbole	Définition
Atome	$^{133}_{55}\text{Cs}$	
Masse atomique	m	132,9 uma = $2,21 \cdot 10^{-25}$ kg
Spin nucléaire	I	7/2
Transition $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$		
Longueur d'onde	$\lambda$	852,35 nm (vide) – 852.11 (air)
Énergie de résonance	$h\nu_0$	1.455 eV
Durée de vie	$\tau$	30.5 ns
Largeur naturelle	$\Gamma$	$2\pi \cdot 5,22$ MHz
Intensité de saturation	$I_{sat}$	1.1 mW.cm <sup>-2</sup>
Refroidissement Doppler		
Vitesse de capture	$v_c \leftrightarrow k_0 v_c = \Gamma$	4,42 m.s <sup>-1</sup>
Température Doppler	$T_D \leftrightarrow k_B T_D = \hbar\Gamma/2$	124,39 $\mu$ K
Vitesse Doppler	$v_d \leftrightarrow mv_D^2/2 = k_B T_D/2$	8,82 m.s <sup>-1</sup>
Vitesse de recul	$v_r \leftrightarrow mv_r = \hbar k_0$	0,352 m.s <sup>-1</sup>
Température de recul	$T_r \leftrightarrow k_B T_r/2 = mv_r^2/2$	198 nK

TAB. D.1: Grandeurs atomiques

## D.2 Structure électronique

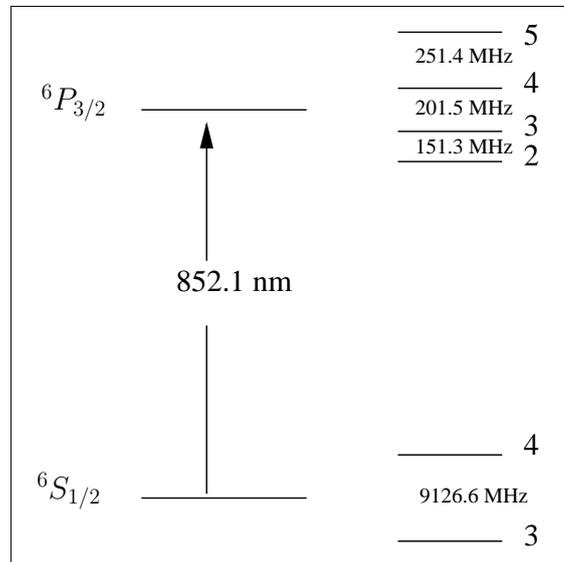
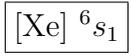


FIG. D.1: Niveaux d'énergie de la transition  $6S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$

### D.3 Spectres d'absorption saturée

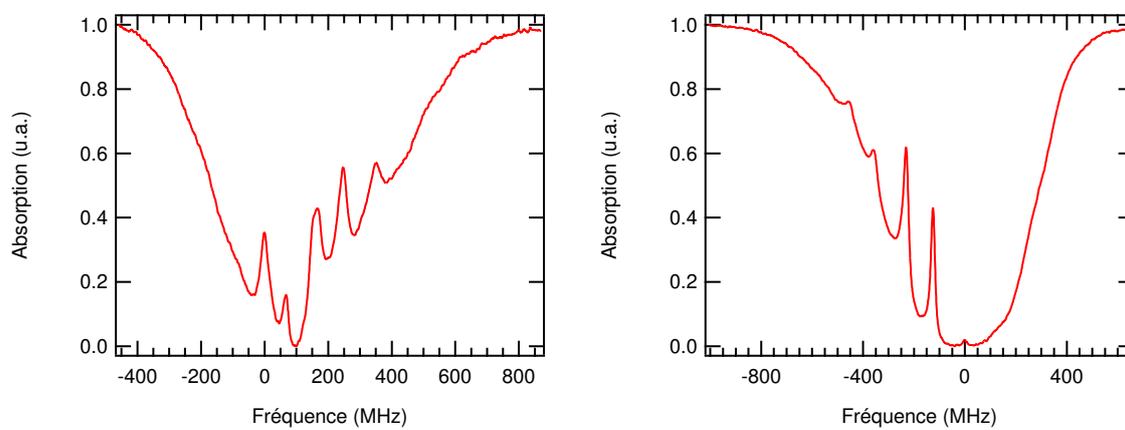


FIG. D.2: Spectres d'absorption saturée de la raie D2 du césium.

## D.4 Diagramme de phases

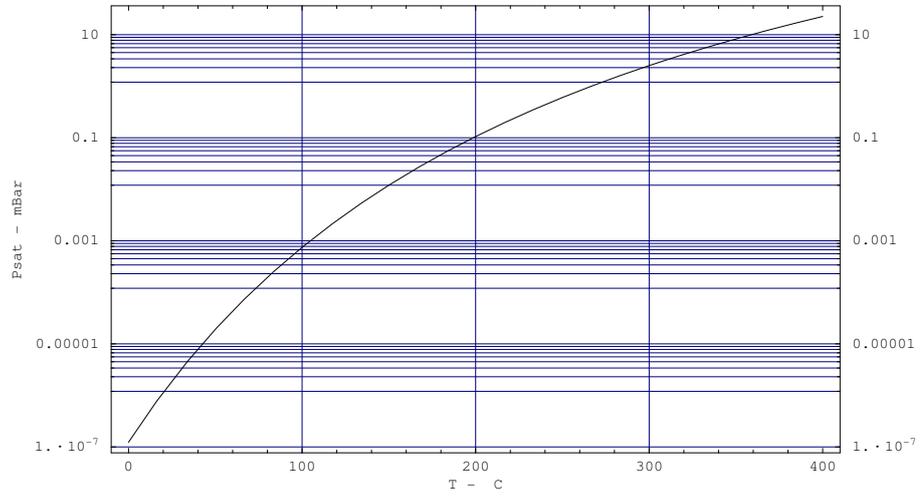


FIG. D.3: Diagramme des phases du césium

# Bibliographie

- [1] D. Meschede and H. Metcalf. Atomic nanofabrication : atomic deposition and lithography by laser and magnetic forces. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 36 :R17–R38, 2003.
- [2] W. Gerlach and O. Stern. . *Z. Phys.*, 8 :110, 1921.
- [3] N. Ramsey. *Molecular Beams*. Springer, 1980.
- [4] H. Metcalf and P. Van Straten. *Laser cooling and trapping*. Addison & Wesley, 1995.
- [5] Laser Cooling and trapping of atoms. special issue. *J. Opt. Soc. of Am. B*, 6 :2020 – 2226, 1989.
- [6] C. Champenois, M. Büchner, R. Delhuille, R. Mathevet, C. Robilliard, C. Rizzo, and J. Vigué. Atomic diffraction by a laser standing wave : analysis using bloch states. *Eur. Phys. J. D*, 13 :271 – 278, 2000.
- [7] J.J. McClelland. Nanofabrication via atom optics. In H.S. Nalwa, editor, *Handbook of Nanostructured Materials and technology*. Academic Press, 1999.
- [8] H.J. Drouhin, C.Hermann, , and G.Lampel. Photoemission from activated gallium arsenide. I. very-high-resolution energy distribution curves. *Phys. Rev. B*, 31(6) :3859 – 3871, 1985.
- [9] H.J. Drouhin, C.Hermann, , and G.Lampel. Photoemission from activated gallium arsenide. II. spinpolarization versus kinetic energy analysis. *Phys. Rev. B*, 31(6) :3872 – 3886, 1985.
- [10] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Processus d'interaction entre photons et atomes*. InterEditions/Editions du CNRS, 1988.
- [11] J. Dalibard and C. Cohen-Tannoudji. Laser cooling below the doppler limit by polarization gradients : simple theoretical models. *J. Opt. Soc. of Am. B*, 6 :2023 – 2045, 1989.
- [12] D.C. Gray and H.H. Sawin. Design considerations for high-flux collisionaly opaque molecular beams. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 10(5) :3229 – 3238, 1992.
- [13] J.A. Giordmaine and T.C. Wang. Molecular beam formation by long parallel tubes. *J. Appl. Phys*, 31(3) :463 – 471, 1960.
- [14] H.C.W. Beijerinck and N.F. Verster. Velocity distribution and angular distribution of molecular beams from multichannel arrays. *J. Appl. Phys.*, 46(5) :2083 – 2091, 1975.
- [15] A. Ulman. Formation and structure of self-assembled monolayers. *Chem. Rev.*, 96 :1533 – 1554, 1996.

- [16] K. K. Berggren, A. Bard, J. L. Wilbur and J. D. Gillaspay, A. G. Helg and J. McClelland, S. L. Rolston, W. D. Phillips, M. Prentiss, and G. M. Whitesides. Microlithography by using neutral metastable atoms and self-assembled monolayers. *Science*, 269 :1255, 1995.
- [17] M. Prentiss, G. Timp, N. Bigelow, R. E. Behringer, , and J. E. Cunningham. Using light as a stencil. *Appl. Phys. Lett.*, 60(8) :1027 – 1029, 1992.
- [18] R. Younkin, K. K. Berggren, K. S. Johnson, M Prentiss, D. C. Ralph, and G. M. Whitesides. Nanostructure fabrication in silicon using cesium to pattern a self-assembled monolayer. *Appl. Phys. Lett.*, 71 :1261, 1997.
- [19] B. Heinz and H. Morgner. Mies investigation of alkanethiol monolayers self-assembled on au(111) and ag(111) surfaces. *Surf. Sci.*, 372 :100 – 116, 1997.
- [20] J. H. Thywissen, K. S. Johnson, R. Younkin, N. H. Dekker, K. K. Berggren, A. P. Chu, M. Prentiss, and S. A. Lee. Nanofabrication using neutral atomic beams. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 15 :2093, 1997.
- [21] C. O'Dwyer, G. Gay, B. Viaris de Lesegno, J. Weiner, K. Ludolph, D. Albert, and E. Oesterschulze. Writing self-assembled monolayers with cs : Optimization of atomic nanolithography imaging using self-assembled monolayers on gold substrates. *J. Appl. Phys.*, 97(11) :114309, 2005.
- [22] C. O'Dwyer, G. Gay, B. Viaris de Lesegno, J. Weiner, M Mützel, D. Haubrich, D. Meschede, K. Ludolph, G. Georgiev, and E. Oesterschulze. Advancing atomic nanolithography : cold atomic cs beam exposure of alkanethiol self-assembled monolayers. *J. Phys. : Conf. Ser.*, 19 :109 – 117, 2005.
- [23] C. O'Dwyer, G. Gay, B. Viaris de Lesegno, J. Weiner, A. Camposeo, F. Tantussi, F. Fuso, M. Allegrini, and E. Arimondo. Atomic nanolithography patterning of submicron features : writing an organic self-assembled monolayer with cold, bright cs atom beams. *Nanotechnology*, 16(9) :1536 – 1541, 2005.
- [24] J. C. Love, L. A. Estroff, J. K. Kriebel, R. G. Nuzzo, and G. M. Whitesides. Self-assembled monolayers of thiolates on metals as a form of nanotechnology. *Chem. Rev.*, 105 :1103 – 1169, 2005.
- [25] Y. Xia and G. M. Whitesides. Soft lithography. *Annu. Rev. Mater. Sci.*, 28 :153 – 184, 1998.
- [26] C. Mihalcea, A. Vollkopf, and E. Oesterschulze. Reproducible large-area microfabrication of sub-100 nm apertures on hollow tips. *Journal of The Electrochemical Society*, 147(5) :1970–1972, 2000.
- [27] M. Mützel, M. Müller, D. Haubrich, U. Rasbach, D. Meschede, C. O'Dwyer, G. Gay, B. Viaris de Lesegno, J. Weiner, K. Ludolph, G. Georgiev, and E. Oesterschulze. The atom pencil : serial writing in the sub-micrometre domain. *Appl. Phys. B*, 80 :941 – 944, 2005.
- [28] C. Girard. Near fields in nanostructures. *Rep. Prog. Phys.*, 68(8) :1883 – 1933, 2005.
- [29] T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi and T. Thio, and P. A. Wolff. Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays. *Nature*, 391 :667–669, 1998.

- 
- [30] H. J. Lezec, A. Degiron, E. Devaux, R. A. Linke, L. Martin-Moreno, F. J. Garcia-Vidal, and T. W. Ebbesen. Beaming light from a subwavelength aperture. *Science*, 297(5582) :820 – 822, 2002.
- [31] R. Quidant, G. Lévêque, R. Mathevet, J.-C. Weeber, Alain Dereux, J. Weiner, and C. Girar. Addressing and imaging microring resonators with optical evanescent light. *Phys. Rev. B*, 69 :81402, 2004.
- [32] F. B. J. Buchkremer, R. Dumke, M. Volk, T. Mütter, G. Birkl, and W. Ertmer. Quantum information processing with microfabricated optical elements. *Laser Phys.*, 12 :736 – 741, 2002.
- [33] S. Eriksson, M. Trupke, H. F. Powell, D. Sahagun, C. D. J. Sinclair, E. A. Curtis, B. E. Sauer, E. A. Hinds, Z. Moktadir, C. O. Gollasch, and M. Kraft. Integrated optical components on atom chips. *Euro. Phys. J.D*, 35 :135 – 139, 2005.
- [34] Ron Folman, Peter Krüger, Donatella Cassetari, Björn Hessmo, Thomas Maier, and Jörg Schmiedmayer. Controlling cold atoms using nanofabricated surfaces : Atom chips. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :47949, 2000.
- [35] J. Estève, T. Schumm, J.-B. Trebbia, I. Bouchoule, A. Aspect, and C. I. Westbrook. Realizing a stable magnetic double-well potential on an atom chip. *Eur. Phys. J. D*, 35(1) :141 – 146, 2005.
- [36] F. J. Garcia-Vidal, L. Martin-Moreno, H. J. Lezec, and T. W. Ebbesen. Focusing light with a single subwavelength aperture flanked by surface corrugations. *App. Phys. Lett.*, 83(22) :4500–4502, December 2003.
- [37] H. J. Lezec and T. Thio. Diffracted evanescent wave model for enhanced and suppressed optical transmission through subwavelength hole arrays. *Opt. Express*, 12 :3629–3651, 2004.
- [38] J. A. Porto, F. J. Garcia-Vidal, and J. B. Pendry. Transmission resonances on metallic gratings with very narrow slits. *Phys. Rev. Lett.*, 83(14) :2845–2848, October 1999.
- [39] P. Lalanne, J. P. Hugonin, S. Astilean, M. Palamaru, and K. D. Moller. One-mode model and airy-like formulae for one-dimensional metallic gratings. *J. Opt. A*, 2(1) :48, 2000.
- [40] L. Martin-Moreno, F. J. Garcia-Vidal, H. J. Lezec, K. M. Pellerin, T. Thio, J. B. Pendry, and T. W. Ebbesen. Theory of extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays. *Phys. Rev. Lett.*, 86(6) :1114–1117, February 2001.
- [41] M. M. J. Treacy. Dynamical diffraction in metallic optical gratings. *App. Phys. Lett.*, 75(5) :606–608, August 1999.
- [42] M. M. J. Treacy. Dynamical diffraction explanation of the anomalous light transmission through metallic gratings. *Phys. Rev. B*, 66 :195105–1–195105–10, 2002.
- [43] M. Sarrazin, J.-P. Vigneron, and J.-M. Vigoureux. Role of wood anomalies in optical properties of thin metallic films with a bidimensional array of subwavelength holes. *Phys. Rev. B*, 67(8) :085415, 2003.
- [44] C. Genet, M. P. van Exter, and J. P. Woerdman. Fano-type interpretation of red shifts and red tails in hole array transmission spectra. *Opt. Commun.*, 225 :331–336, 2003.

- 
- [45] A. R. Zakharian, M. Mansuripur, and J.V. Moloney. Transmission of light through small elliptical apertures. *Opt. Express*, 12(12) :2631 – 2648, 2004.
- [46] C. Kittel. *Physique de l'état solide*. Dunod, septième édition, 1988.
- [47] Heinz Raether. *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings*. Springer-Verlag, 1988.
- [48] P. B. Johnson and R. W. Christy. Optical constants of the noble metals. *Phys. Rev. B.*, 6(12) :4370 – 4379, 1972.
- [49] A. V. Zayats and I. I. Smolyaninov. Near-field photonics : surface plasmon polaritons and localized surface plasmons. *J. Opt. A*, 5 :516–850, 2003.
- [50] J. A. Dionne, L. A. Sweatlock, H. A. Atwater, and A. Polman. Planar metal plasmon waveguides : frequency-dependent dispersion, propagation, localization, and loss beyond the free electron model. *Phys. Rev. B*, 72(7) :075405, 2005.
- [51] C. J. Bouwkamp. Diffraction theory. *Rep. Prog. Phys.*, XVIII(35) :35 – 100, 1954.
- [52] M. W. Kowartz. Homogeneous and evanescent contributions in scalar near-field diffraction. *App. Opt.*, 34(17) :3055–3063, 1995.
- [53] Y. Takakura. Optical resonance in a narrow slit in a thick metallic screen. *Phys. Rev. Lett.*, 86(24) :5601, 2001.
- [54] S. V. Kukhlevsky, M. Mechler, L. Csapo, K. Janssens, and O. Samek. Enhanced transmission versus localization of a light pulse by a subwavelength metal slit. *Phys. Rev. B*, 70(19) :6106, 2004.
- [55] F. L. Neerhoff and G. Mur. Diffraction of plane electromagnetic waves by a slit in a thick screen placed between two different media. *Appl. Sci. Res.*, 28(73), 1973.
- [56] J. Lindberg, K. Lindfors, T. Setälä, M. Kaivola, and A. T. Friberg. Spectral analysis of resonant transmission of light through a single sub-wavelength slit. *Opt. Express*, 12(4) :623, 2004.
- [57] A. P. Hibbins, J. R. Sambles, and C. R. Lawrence. Gratingless enhanced microwave transmission through a subwavelength aperture in a thick metal plate. *App. Phys. Lett.*, 81(24) :4661–4663, 2002.
- [58] Y. Xie, A. R. Zakharian, J. V. Moloney, and M. Mansuripur. Transmission of light through slit apertures in metallic films. *Opt. Express*, 12(25) :6106 – 6121, 2004.
- [59] F. Yang and J. R. Sambles. Resonant transmission of microwaves through a narrow metallic slit. *Phys. Rev. Lett.*, 89(6) :63901, 2002.
- [60] S.-H. Chang, S. K. Gray, and G. C. Schatz. Surface plasmon generation and light transmission by isolated nanoholes and arrays of nanoholes in thin metal films. *Opt. Express*, 13(8) :3150–3165, 2005.
- [61] P. Lalanne, J. P. Hugonin, and J. C. Rodier. Theory of surface plasmon generation at nanoslit apertures. *Phys. Rev. Lett.*, 95(26) :263902, 2005.
- [62] Hugo F. Schouten, Taco D. Visser, Daan Lenstra, and Hans Blok. Light transmission through a subwavelength slit : Waveguiding and optical vortices. *Phys. Rev. E*, 67(3) :036608, 2003.

- 
- [63] H. A. Bethe. Theory of diffraction by a small hole. *Phys. Rev.*, 66 :163–182, 1944.
- [64] F. J. García de Abajo. Light transmission through a single metallic hole in a metallic film. *Opt. Express*, 10(25) :1475, 2002.
- [65] E. Popov, M. Neviere, P. Boyer, and N. Bonod. Light transmission through a subwavelength hole. *Opt. Commun.*, 255(4-6) :338, 2005.
- [66] E. Popov, M. Nevière, S. Enoch, and R. Reinisch. Theory of light transmission through subwavelength periodic hole arrays. *Phys. Rev. B*, 62 :16100–16108, December 2000.
- [67] F. J. García de Abajo, R. Gomez-Medina, and J. J. Saenz. Full transmission through perfect-conductor subwavelength hole arrays. *Phys. Rev. E*, 72(1) :016608, 2005.
- [68] W. L. Barnes, W. A. Murray, J. Dintinger, E. Devaux, and T. W. Ebbesen. Surface plasmon polaritons and their role in the enhanced transmission of light through periodic arrays of subwavelength holes in a metal film. *Phys. Rev. Lett.*, 92(10) :149, 2004.
- [69] C. Genet, M. P. van Exter, and J. P. Woerdman. Huygens description of resonance phenomena in subwavelength hole arrays. *J. Opt. Soc. Am. A*, 22 :998–1002, May 2005.
- [70] P. Lalanne, J. C. Rodier, and J. P. Hugonin. Surface plasmons of metallic surfaces perforated by nanohole arrays. *J. Opt. A*, 7(8) :422, 2005.
- [71] Qing Cao and Philippe Lalanne. Negative role of surface plasmon in the transmission of metallic gratings with very narrow slits. *Phys. Rev. Lett.*, 88(5) :057403–1–057403–3, February 2002.
- [72] K. G. Lee and Q. H. Park. Coupling of surface plasmon polaritons and light in metallic nanoslits. *Phys. Rev. Lett.*, 95(10) :103902, 2005.
- [73] Y. Liu and S. Blair. Fluorescence transmission through 1-D and 2-D periodic metal films. *Opt. Express*, 12(16) :3686, 2004.
- [74] L. Martin-Moreno and F. J. Garcia-Vidal. Optical transmission through circular holes arrays in optically thin metal films. *Opt. Express*, 12(16) :3619–3628, 2004.
- [75] S. Wedge and W. L. Barnes. Surface plasmon-polariton mediated light emission through thin metal films. *Opt. Express*, 12(16) :3673, 2004.
- [76] I. R. Hooper and J. R. Sambles. Coupled surface plasmon polaritons on thin metal slabs corrugated on both surfaces. *Phys. Rev. B*, 70(4) :1472, 2004.
- [77] R. W. Wood. Anomalous diffraction gratings. *Phys. Rev.*, 48 :928–936, 1935.
- [78] E. Moreno, L. Martin-Moreno, and F. J. Garcia-Vidal. Extraordinary optical transmission without plasmons : the s-polarization case. *ArXiv*, 1 :1–4, 2005.
- [79] J. B. Pendry, L. Martin-Moreno, and F. J. Garcia-Vidal. Mimicking surface plasmons with structured surfaces. *Science*, 305 :847–848, August 2004.
- [80] A. Hessel and A. A. Oliner. A new theory of wood’s anomalies on optical gratings. *Appl. Opt.*, 4 :1275, 1965.
- [81] D. Maystre and M. Neviere. Quantitative theoretical study of the plasmon anomalies of diffraction gratings. *J. Opt.*, 8(3) :165 – 174, 1977.
- [82] M. Neviere, D. Maystre, and P. Vincent. Determination of the leaky modes of a corrugated waveguide : application to the study of anomalies of dielectric coated gratings. *J. Opt.*, 8(4) :231 – 242, 1977.

- [83] A. G. Borisov, F. J. García de Abajo, and S. V. Shabanov. Role of electromagnetic trapped modes in extraordinary transmission in nanostructured materials. *Phys. Rev. B*, 71(7) :075408, February 2005.
- [84] W. L. Barnes, A. Dereux, and T. W. Ebbesen. Surface plasmon subwavelength optics. *Nature*, 424 :824–830, 2003.
- [85] F. J. Garcia-Vidal, H. J. Lezec, T. W. Ebbesen, and L. M. Martin-Moreno. Multiple paths to enhance optical transmission through a single subwavelength slit. *Phys. Rev. Lett.*, 90(21) :213901–1–213901–4, May 2003.
- [86] F. Lopez-Tejeira, F. J. Garcia-Vidal, and L. Martin-Moreno. Scattering of surface plasmons by one-dimensional periodic nanoindented surfaces. *Phys. Rev. B*, 72(16) :161405, 2005.
- [87] H. Cao, A. Agrawal, and A. Nahata. Controlling the transmission resonance lineshape of a single subwavelength aperture. *Opt. Express*, 13(3) :763, 2005.
- [88] Z. B. Li, J. G. Tian, Z. B. Liu, W. Y. Zhou, and C. P. Zhang. Enhanced light transmission through a single subwavelength aperture in layered films consisting of metal and dielectric. *Opt. Express*, 13(22) :9071, 2005.
- [89] P. K. Wei, H. L. Chou, Y. R. Cheng, C. H. Wei, W. Fann, and J. O. Tegenfeldt. Beaming effect of optical near-field in multiple metallic slits with nanometric linewidth and micrometer pitch. *Opt. Commun.*, 253 :198–204, 2005.
- [90] L. B. Yu, D. Z. Lin, Y. C. Chen, Y. C. Chang, K. T. Huang, J. W. Liaw, J. T. Yeh, J. M. Liu, C. S. Yeh, and C. K. Lee. Phys. origin of directional beaming emitted from a subwavelength slit. *Phys. Rev. B*, 71(4) :763, 2005.
- [91] H. J. Lezec, A. Degiron, E. Devaux, R. A. Linke, L. Martin-Moreno, F. J. Garcia-Vidal, and T. W. Ebbesen. Beaming light from a subwavelength aperture. *Science*, 297 :820 – 822, 2003.
- [92] H. F. Schouten, N. Kuzmin, G. Dubois, T. D. Visser, G. Gbur, P. F. A. Alkemade, H. Blok, G. W. 't Hooft, D. Lenstra, and E. R. Eliel. Plasmon-assisted two-slit transmission : Young's experiment revisited. *Phys. Rev. Lett.*, 94(5) :53901, 2005.
- [93] L. Yin, V. K. Vlasko-Vlasov, J. Pearson, J. M. Hiller, J. Hua, U. Welp, D. E. Brown, and C. W. Kimball. Subwavelength focusing and guiding of surface plasmons. *Nano Lett.*, 5(7) :1399–1402, 2005.
- [94] J. C. Weeber. Plasmonique et microscopie optique de champ proche. In J. Phys. IV Proceedings, editor, *Actes du neuvième Colloque sur l'Optique Quantique et les Lasers – colloq'9*. Société Française de Physique, 2005.
- [95] Y. Todorov, I. Abram, and C. Minot. Dipole emission into rectangular metallic gratings with subwavelength slits. *Phys. Rev. B*, 71(7) :3535, 2005.
- [96] H. Rigneault, J. Capoulade, J. Dintinger, J. Wenger, N. Bonod, E. Popov, T. W. Ebbesen, and P. F. Lenne. Enhancement of single-molecule fluorescence detection in subwavelength apertures. *Phys. Rev. Lett.*, 95(11) :343, 2005.
- [97] L. Martin-Moreno, F. J. Garcia-Vidal, H. J. Lezec, A. Degiron, and T. W. Ebbesen. Theory of highly directional emission from a single subwavelength aperture surrounded by surface corrugation. *Phys. Rev. Lett.*, 90(16) :167401–1–167401–4, April 2003.

- 
- [98] A.E. Siegman. *Lasers*. University Science Books, 1996.
- [99] V. I. Balykin, V. S. Letokhov, Yu. B. Ovchinnikov, and A. I. Sidorov. Focusing of an atomic beam and imaging of atomic sources by means of a laser lens based on resonance-radiation pressure. *J. Mod. Opt.*, 35 :17 – 34, 1988.
- [100] G. Timp, R. E. Behringer, D. M. Tennant, J. E. Cunningham, M. Prentiss, and K. K. Berggren. Caesium lithography with a standing wave on a self assembled monolayer. *Phys. Rev. Lett.*, 69 :1636–1639, 1992.
- [101] W.R. Anderson. Minimizing feature width in atom optically fabricated chromium nanostructures. *Phys. Rev. A*, 59(3) :2476 sq, 1999.
- [102] R. W. McGowan, D. M. Giltner, and Siu Au Lee. Light force cooling, focusing, and nanometer-scale deposition of aluminum atoms. *Opt. Lett.*, 20 :2535 – 2537, 1995.
- [103] G. Timp, R. E. Behringer, D. M. Tennant, J. E. Cunningham, M. Prentiss, and K. K. Berggren. Using light as a lens for submicron, neutral-atom lithography. *Phys. Rev. Lett.*, 69 :1636–1639, 1992.
- [104] R. Gupta, J.J. McClelland, P. Marte, and R.J. Celotta. Raman induced avoided crossings in adiabatic optical potentials : observation of  $\lambda/8$  spatial frequency in the distribution of atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 76(25) :4689 – 4692, 1996.
- [105] J.J. McClelland. Atom-optical properties of a standing-wave light field. *J. Opt. Soc. of Am. B*, 12(10) :1761–1768, 1995.
- [106] T. Sleator, T. Pfau, V. Balykin, and J. Mlynek. Imaging and focusing of an atomic beam with a large period standing light wave. *Appl. Phys. B*, 54 :375 – 379, 1992.

## Résumé

Cette thèse porte sur la manipulation d'atomes à l'aide d'objets nanostructurés. Deux études expérimentales liées à cette thématique ont été menées. La première a été consacrée à la mise en place d'un jet de césium intense refroidi transversalement par mélasse optique et à sa caractérisation. Cette source a été appliquée à la lithographie atomique de film d'or *via* des monocouches moléculaires auto-assemblées. Après une caractérisation des différentes étapes du procédé, nous avons employé des masques matériels pour graver des motifs de taille sub-micrométrique sur la surface d'or. Nous avons obtenu des trous de 250 nm de diamètre, cette résolution étant limitée par la taille des masques employés.

Le deuxième ensemble d'expériences concerne la réponse optique d'ouvertures sub-longueur d'onde dans des films minces métalliques. Nous avons d'abord mis en place un dispositif d'imagerie par microscopie de fluorescence qui nous a permis de cartographier le champ lumineux mis en forme par une fente sub-longueur d'onde entourée par des sillons périodiques. Pour mieux comprendre les mécanismes en jeu dans la transmission de la lumière par ces éléments, les propriétés de structures simples ont été étudiées par interférométrie en champ lointain. Les résultats quantitatifs obtenus permettent une description phénoménologique des procédés élémentaires en jeu dans ces éléments qui peut être comparée aux modèles théoriques.

**Mots-clés:** jet atomique, mélasse optique, optique atomique, nano-lithographie, couches monomoléculaire auto assemblées, masques matériels nanométriques; microscopie de fluorescence, ouvertures métalliques sub-longueur d'onde, plasmon polariton de surface.

## Abstract

This thesis is concerned with cold atoms manipulation with nanostructured objects. Two series of experiments linked with this topic were carried out. In the first one we have implemented and characterised an intense atomic beam transversally cooled by optical molasses. This source was used in lithography experiments to pattern gold films *via* self assembled monolayers. After a study of each step of the process, we have investigated the use of different types of material masks to realized sub-micron features on the gold substrate. We have achieved feature sizes down to 250 nm, this resolution being limited by the size of the material mask.

In a second group of experiments, we have studied the optical response of sub-wavelength apertures in metallic thin films. We have first developed a microscopy fluorescent imaging setup used to map the optical field shaped by subwavelength slits flanked by periodical grooves. To gain understanding on the physics of light transmission by these elements, we have then performed systematic studies of the optical properties of simple subwavelength apertures by far field interferometry. The quantitative results obtained allow a phenomenological description of the elementary processes involved in those devices and can be compared to theoretical models.

**Keywords:** atomic beam, optical molasses, atom optics, nano-lithography, self assembled monolayers; fluorescence microscopy, sub-wavelength metallic apertures, surface plasmon polariton.