



**HAL**  
open science

# Etude et manipulation de modes résonnants en champ proche optique

Damien Brissinger

► **To cite this version:**

Damien Brissinger. Etude et manipulation de modes résonnants en champ proche optique. Autre [cond-mat.other]. Université de Bourgogne, 2010. Français. NNT : 2010DIJOS086 . tel-00688008

**HAL Id: tel-00688008**

**<https://theses.hal.science/tel-00688008>**

Submitted on 16 Apr 2012

**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.

# Université de Bourgogne

UFR Sciences et Techniques  
Ecole doctorale Carnot  
Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne  
Groupe d'optique de champ proche

## THÈSE

Pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Bourgogne  
Spécialité : Physique

par

**Damien BRISSINGER**

Ingénieur de l'Ecole Supérieure d'Ingénieurs de REcherche en Matériaux

Titre de la thèse :

## ETUDE ET MANIPULATION DE MODES RÉSONANTS EN CHAMP PROCHE OPTIQUE

Soutenue publiquement le 17 Novembre 2010

devant la commission d'examen suivante :

M.	P. Lalanne	Directeur de Recherche du CNRS	LCFIO	Rapporteur
M.	J. Zyss	Professeur à l'ENS de Cachan	LPQM de l'IDA	Rapporteur
M.	L. Aigouy	Chargé de Recherche du CNRS	LPEM de l'ESPCI	Examineur
M.	S. Collin	Chargé de Recherche du CNRS	LPN	Examineur
M.	P. Grelu	Professeur à l'Univ. de Bourgogne	LICB	Président
M <sup>me</sup>	F. de Fornel	Directeur de Recherche du CNRS	LICB	Dir. de thèse
M.	L. Salomon	Maître de Conf. à l'Univ. de Bourgogne	LICB	



*À mes parents,  
Pour leur soutien sans faille.*

*À ma bonne fée Mélusine,  
Qui veille sur moi jour après jour  
pour le meilleur et pour le pire.*

*À nos petits lutins...  
Ça y est... papa a fini le manuscrit !!!*



## Sommaire

### *Remerciements*

HISTORISME	1
INTRODUCTION DE LA THESE	3

### **1<sup>ERE</sup> PARTIE:**

#### **INTRODUCTION A LA MICROSCOPIE CHAMP PROCHE 5**

#### **I. LA MICROSCOPIE OPTIQUE**

I.1. MICROSCOPIE OPTIQUE CLASSIQUE ET LIMITATION	5
I.1.a. <i>Les microscopes</i>	5
I.1.b. <i>Le critère de Rayleigh-Abbe</i>	6
I.2. ONDE ELECTROMAGNETIQUE ET PROPAGATION	9
I.2.a. <i>Rappel des équations de Maxwell</i>	9
I.2.b. <i>L'expérience de Newton</i>	11
I.2.c. <i>Réflexion, réfraction et onde évanescente</i>	12
I.2.d. <i>La propagation, un filtre passe bas des fréquences spatiales</i>	14

#### **II. LA MICROSCOPIE EN CHAMP PROCHE OPTIQUE**

II.1. PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DU SNOM	16
II.1.a. <i>L'asservissement</i>	18
II.1.b. <i>Détection des forces de cisaillement</i>	20
II.2. DESCRIPTION DU SNOM UTILISE LORS DE CETTE THESE	21
II.2.a. <i>Description du fonctionnement</i>	21
II.2.b. <i>Les sondes</i>	22
II.3. LES DIFFERENTES CONFIGURATIONS OPTIQUES	23
II.3.a. <i>Mode illumination</i>	23
II.3.b. <i>Mode collection</i>	23
II.3.c. <i>Mode apertureless</i>	24
II.3.d. <i>Mode perturbation</i>	25

#### **CONCLUSION DE LA 1<sup>ERE</sup> PARTIE 26**

### **2<sup>EME</sup> PARTIE :**

#### **ETUDE DE LA PERTURBATION INDUITE PAR UNE SONDE CHAMP PROCHE SUR LA STABILITE D'UNE NANO-CAVITE 27**

#### **INTRODUCTION DE LA 2<sup>EME</sup> PARTIE 27**

#### **III. NANO-CAVITES EN REGIME LINEAIRE**

III.1. NANO-CAVITE FABRY-PEROT	29
III.1.a. <i>L'interféromètre Fabry-Perot</i>	29
III.1.b. <i>Nano-cavité Fabry-Perot à cristal photonique intégrée</i>	29
III.1.c. <i>Mesures en transmission</i>	30
III.2. MODELE FABRY-PEROT	32
III.2.a. <i>Description du modèle Fabry-Perot associé</i>	32
III.2.b. <i>Caractéristiques des nano-cavités Fabry-Perot étudiées</i>	33
III.2.c. <i>Limites du modèle Fabry-Perot</i>	35

<b>IV.</b>	<b>CAVITES EN REGIME NON-LINEAIRE</b>	
IV.1.a.	<i>Effets non-linéaires dans le Silicium</i>	37
IV.1.b.	<i>Mesures spectrales à forte puissance d'injection</i>	39
IV.2.	MODELE FP NON-LINEAIRE	42
IV.2.a.	<i>Description du modèle FP non-linéaire</i>	42
IV.2.b.	<i>Analyse des mesures spectrales en régime non-linéaire</i>	44
IV.3.	MESURE DES FONCTIONS DE TRANSFERT EN INTENSITE	45
IV.3.a.	<i>Description du dispositif expérimental</i>	45
IV.3.b.	<i>Modélisation des fonctions de transfert en intensité</i>	48
<b>V.</b>	<b>ETUDE DE L'INTERACTION DE LA NANO-CAVITE AVEC UNE SONDE CHAMP PROCHE</b>	
V.1.	INTERACTION EN REGIME LINEAIRE	49
V.1.a.	<i>Etude de l'interaction sonde champ proche - cavité</i>	49
V.1.b.	<i>Mesure du déphasage introduit par la sonde</i>	50
V.1.c.	<i>Description et limites du modèle FP associé</i>	51
V.2.	INTERACTION EN REGIME NON-LINEAIRE	52
V.2.a.	<i>Description du mode opératoire</i>	52
V.2.b.	<i>Interprétation des mesures à l'aide du modèle FP</i>	53
V.3.	SYNTHESE, DIAGRAMME $H_{\text{SONDE}}-I^{\text{IN}}$	55
V.3.a.	<i>Description de diagrammes <math>h_{\text{sonde}}-I^{\text{in}}</math></i>	55
V.3.b.	<i>Comparaison des diagrammes <math>h_{\text{sonde}}-I^{\text{in}}</math> calculés et mesurés</i>	57
	<b>CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES DE LA 2<sup>EME</sup> PARTIE</b>	
	CONCLUSIONS	59
	PERSPECTIVES	59
	<b>3<sup>EME</sup> PARTIE :</b>	
	<b>ETUDE THEORIQUE ET EXPERIMENTALE DES MODES RESONANTS DE FILMS MINCES METALLIQUES</b>	<b>61</b>
	<b>INTRODUCTION DE LA 3<sup>EME</sup> PARTIE</b>	<b>61</b>
<b>VI.</b>	<b>PLASMONS ET RESONANCE</b>	
VI.1.	LES PLASMONS	63
VI.1.a.	<i>Plasmon de volume et de surface</i>	63
VI.1.b.	<i>Le plasmon-polariton de surface</i>	63
VI.2.	GENERALITES SUR LES SYSTEMES PHYSIQUES	65
VI.2.a.	<i>Le problème homogène</i>	65
VI.2.b.	<i>L'oscillateur mécanique</i>	66
VI.2.b.i.	Système sans amortissement	66
VI.2.b.ii.	Système avec amortissement	68
<b>VII.</b>	<b>ETUDE THEORIQUE DES MODES PROPRES D'INTERFACES METAL/DIELECTRIQUE</b>	
VII.1.	L'INTERFACE UNIQUE	71
VII.1.a.	<i>Position du problème</i>	71
VII.1.b.	<i>Coefficients de Fresnel d'une interface unique</i>	74
VII.1.c.	<i>Angles de Brewster</i>	76
VII.1.d.	<i>Modes d'interfaces résonants</i>	77
VII.1.e.	<i>Courbe de dispersion de l'interface unique Ag/air</i>	81
VII.2.	LE FILM	84
VII.2.a.	<i>Position du problème</i>	84
VII.2.b.	<i>Coefficients de Fresnel d'un film métallique</i>	85
VII.2.c.	<i>Recherche des modes propres de film métallique</i>	86
VII.2.c.i.	Cas du film asymétrique très épais	88
VII.2.c.ii.	Cas du film mince symétrique	89
VII.2.c.iii.	Cas du film mince asymétrique	97

<b>VIII.</b>	<b>EXCITATION OPTIQUE DES PLASMONS-POLARITONS DE SURFACE</b>	
VIII.1.	STRUCTURES PLANAIRES CONTINUES	108
VIII.1.a.	<i>Configuration d'Otto</i>	109
VIII.1.b.	<i>Configuration de Kretschmann-Raether</i>	110
VIII.2.	STRUCTURES PLANAIRES DISCONTINUES	115
VIII.2.a.	<i>Cas de multiples discontinuités périodiques</i>	115
VIII.2.b.	<i>Cas de la discontinuité unique</i>	116
VIII.2.c.	<i>Etude numérique du mode résonant associé à l'interface métal/verre</i>	120
VIII.3.	STRUCTURE PLANAIRE CONTINUE EXCITEE PAR UN SPECTRE D'ONDES PLANES	122
<b>IX.</b>	<b>ETUDE EXPERIMENTALE DES MODES RESONANTS DE FILMS MINCES METALLIQUES</b>	
IX.1.	ETUDE REALISEE SUR DES FENTES SUB-LONGUEUR D'ONDE	127
IX.1.a.	<i>Configuration expérimentale</i>	127
IX.1.b.	<i>Observations expérimentales</i>	128
IX.1.c.	<i>Méthode de simulation numérique</i>	130
IX.1.d.	<i>Observations numériques</i>	132
IX.1.d.i.	Observations numériques dans l'espace direct	132
IX.1.d.ii.	Observations numériques dans l'espace des k	135
IX.2.	PROTOCOLE EXPERIMENTAL POUR L'ETUDE DE MARCHES METALLIQUES UNIQUES	138
IX.3.	MARCHE UNIQUE : INTERFACES 'QUASI-DECOUPLEES'	139
IX.3.a.	<i>Etude en fonction de l'angle d'incidence</i>	139
IX.3.a.i.	Observations expérimentales	139
IX.3.a.ii.	Interprétation des observations expérimentales	141
IX.3.a.iii.	Observations numériques	144
IX.3.b.	<i>Etudes en fonction de la longueur d'onde</i>	146
IX.3.b.i.	Mesure des composantes réelles des vecteurs d'onde résonants	146
IX.3.b.ii.	Mesure des composantes imaginaires des vecteurs d'onde résonants	148
IX.4.	MARCHE UNIQUE : INTERFACES COUPLEES	150
IX.4.a.	<i>Observations expérimentales</i>	150
<b>CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES DE LA 3<sup>EME</sup> PARTIE</b>		
CONCLUSIONS		151
PERSPECTIVES		152
<b>CONCLUSIONS GENERALES</b>		<b>153</b>
<b>PERSPECTIVES GENERALES</b>		<b>154</b>
<b>ANNEXE A. COMPARAISON DES RESULTATS OBTENUS SUR LES DIFFERENTES CAVITES FABRY-PEROT</b>		<b>155</b>
<b>ANNEXE B. COURBES DE DISPERSION DES MODES D'ORDRE 0 D'UN FILM MINCE D'OR ASYMETRIQUE</b>		<b>159</b>
<b>ANNEXE C. LA METHODE DIFFERENTIELLE</b>		<b>165</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE</b>		<b>169</b>





## Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au sein du groupe d'optique de champ proche du Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne de l'université de Bourgogne et financé dans le cadre d'une allocation de recherche du Ministère de l'Éducation Nationale, de la Recherche et de la Technologie.

Je souhaite tout d'abord remercier Mme Frédérique de Fornel de m'avoir accueilli au sein de son groupe. Je tiens également à la remercier pour la confiance et l'autonomie qu'elle m'a accordée et qui ont ainsi permis le développement de ces travaux. Malgré ses nombreuses responsabilités, elle a toujours su trouver le temps de discuter et d'apporter sa contribution aux différents travaux réalisés.

Je remercie l'ensemble du jury qui a pris le temps d'évaluer les différents travaux relatés dans cette thèse, et tout particulièrement Mr P. Lalanne et J. Zyss de m'avoir fait l'honneur d'en être les rapporteurs. Je remercie également S. Collin d'avoir accepté d'examiner ce travail, et d'avoir prolongé la discussion scientifique des différents résultats présentés. Je remercie doublement L. Aigouy et P. Grelu. Tout d'abord (d'un point de vue protocolaire), pour avoir accepté de faire partie de ce jury, mais également pour leur participation scientifique et cordiale à cette thèse. Enfin, je remercie ici une première fois L. Salomon d'avoir accepté de participer à ce jury...en plus !!!

Laurent... Merci une seconde fois. Je n'en listerais pas ici les nombreuses raisons, je ne citerais que ta participation scientifique et humaine essentielle à cette thèse. Ces longues discussions à la fin desquelles le 'On a encore rien compris p.....!' ne servaient que de tremplin pour aller encore plus loin.

Je remercie également les autres permanents qui participent au noyau si agréable du groupe ; Benoit, toujours prêt à dépoussiérer les manips, Denis, toujours prêt à fêter ça !. Merci à Nicole remplacée par Fortunata, pour avoir joué si souvent et si agréablement l'interface avec les arcanes de l'administration !!!

Enfin, de grands mercis à Colette, l'artiste des sondes du labo !!! Qui a partagé son bureau, son bagou, son ordi, ses stylos et ses balles de tennis avec moi.

Merci à tous ceux, j'espère ne pas en oublier par la suite, qui m'ont accompagné au cours de ces années.

A ceux qui ont participé de près ou de loin à ces travaux :

Merci à toi, Loïc de m'avoir patiemment et dans les détails présenté cette manip de champ proche. Merci aussi pour tes coups de main, sur matlab ou sur la manip.

Merci aux gars de l'atelier, Jean-Marc, Dédé et le dernier venu, Brice. La qualité des nombreuses pièces de leur manufacture qui ont permis aux sondes champ proche d'arriver en face des échantillons n'a eu d'égale que leur convivialité.

Merci à toi, Aude. Pour le travail et les pauses cafés partagés.

Merci à toi, Thomas pour les échantillons et ton accueil lors de mes venues sur Grenoble.

Je tiens également à faire un clin d'œil à ceux qui ont partagé avec moi la salle de manip, plongée dans le noir. Ces porteurs d'aide ou d'échantillon qui m'ont fait confiance et pour qui les lois du champ proche furent parfois insurmontables. Désolé messieurs, je vais commencer par les filles ! Clin d'œil donc à Aude, Marlène et Nadia, mais également à Aurélien et Kevin.

Une pensée pour tous les autres qui ont aussi accompagné ces années dans la bonne humeur. Je pense tout particulièrement à mes collègues de bureau, Loïc, puis Habib, Houssein et Colette. Et tous les autres, cités volontairement dans aucun ordre !!! Geoffroy, Franck, Habib, Zoheir, Rihad (jamais à cours d'un sujet de conversation), Mohammed, Jean, Maher, Yacoub... Bonne continuation à vous tous.

Une pensée enfin, à ma famille et mes amis, à ceux qui étaient là le jour de la soutenance ! Mes parents, ma sœur, mon frère (& sa belle), marraine et patrick, mais aussi à ceux qui n'étaient pas là !! Merci pour leur soutien et leurs encouragements. Et un petit coucou vers les îles et la maison de retraite !

Pour terminer, je dédicace, les courbes obtenues et présentées pages 94, 98, 99, 100, 103, 106 et dans l'annexe B au capitaine Achab, en espérant qu'elles ne soient funestes à personne.

Enfin, pour tout oubli involontaire sur cette page de remerciements, merci de ne pas accumuler de rancœur et de me le faire savoir, je corrigerais avec le plus grand plaisir mon erreur!!!

*La logique qui peut seule donner la certitude est l'instrument de  
la démonstration : l'intuition est l'instrument de l'invention.*

Henri Poincaré (1854-1912)



## Historisme

Pour commencer, puisqu'une partie de cette thèse fut de connaître et de comprendre ce qui avait été fait, je voudrais replacer le travail effectué dans le très vaste travail de l'optique et des sciences en général.

Pendant de très nombreuses années, l'onde électromagnétique ne fut probablement connue qu'au travers de la lumière visible, cette infime partie de la lumière perçue par l'œil et qui fait de la vue un sens majeur. En effet, la vue nous communique un grand nombre d'informations sur notre environnement proche et lointain. Déstabilisé en l'absence de lumière, il n'est pas étonnant que l'Homme ait attribué au Soleil et à la Lune une importance toute particulière. Et ce n'est pas un hasard non plus si très vite, les penseurs et les scientifiques ont tenté de comprendre ce phénomène et de l'utiliser au mieux, donnant ainsi naissance à la science qui étudie la propagation de la lumière et la formation des images dans l'œil, l'optique.

De manière empirique, les premières observations ont vraisemblablement concerné les couleurs, la propagation rectiligne de la lumière dans l'air, l'eau, le verre..., la réflexion et la réfraction à l'interface entre ces différents matériaux... Probablement sans que les mécanismes en aient été bien compris, il semble que les plus anciens objets artificiels qui relèvent de l'optique soient des lentilles fabriquées à base de minéraux polis. Les archéologues présumant qu'elles étaient utilisées pour focaliser la lumière du soleil afin d'enflammer ou de dégrader des matériaux. La plus ancienne trace de la loi des sinus relative à la réfraction est attribuée au scientifique Ibn Sahl [Kwan02]. Mais la première étude remarquable des lois de base de l'optique a été retrouvée dans les écrits d'Al Hazen datant de l'an mille environ [AlHazen]. Dans l'un de ses nombreux livres *Opticae Thesaurus*, il étudie et retranscrit pour la première fois le fonctionnement des lentilles de manière scientifique. Ses travaux et ceux qui suivront serviront de base à l'optique géométrique. Et avec elle, sont apparus les premiers instruments d'optique dont le 'tube optique' est probablement une des applications les plus marquantes. Réalisé par l'assemblage de deux lentilles, il permet de 'détailler' des images proches ou lointaines. A l'origine, principalement réalisé à des fins militaires, il trouva ses lettres de noblesse dans l'observation astronomique. Et bien que la paternité en soit discutée, la plus connue est sans doute la lunette de Galilée avec laquelle il réalisa des observations astronomiques nombreuses et détaillées. Permettant l'étude de domaines, grand ou petit, inobservables à l'œil nu, cet outil va provoquer des avancées dans de nombreuses disciplines et notamment en 'mécanique celeste', allant jusqu'à bousculer certaines théories et croyances alors bien établies. Mais si l'Homme commence à maîtriser la propagation de la lumière dans les systèmes macroscopiques, il n'a que peu d'informations sur la lumière elle-même. Deux théories s'opposent alors pour comprendre sa nature, la théorie dite corpusculaire et la théorie ondulatoire. La première considère la propagation de petites particules et permet de rendre compte d'un certain nombre d'observations expérimentales. La notoriété de son principal défenseur, Sir Isaac Newton permettra de passer outre le phénomène de diffraction observé par Grimaldi en 1665 et difficilement explicable avec cette théorie. La théorie ondulatoire,

basée elle sur la propagation d'ondes, est mise en avant par Christian Huygens. Elle permet bien d'expliquer le phénomène de diffraction, mais elle ne commencera à s'imposer qu'après les travaux d'Etienne Louis Malus sur la polarisation de la lumière et ceux de Thomas Young et Augustin Fresnel sur la diffraction. L'expérience peine tout de même à discriminer définitivement l'une des deux théories.

D'après les prédictions de chacune des deux théories, on sait que la mesure de la vitesse de la lumière permettra de discriminer le modèle le plus pertinent. Une des découvertes d'importance fut alors donnée comme un juste retour des choses par les progrès réalisés en mécanique céleste. Bien que sa mesure soit très imprécise, en prédisant les éclipses du satellite Io de Jupiter, l'astronome Ole Christensen Rømer démontre que la vitesse de la lumière n'est pas infinie. Par la suite, réalisant une expérience terrestre, Hippolyte Fizeau en précise la mesure, mais c'est finalement Léon Foucault, qui en laboratoire montre que la vitesse de la lumière est inversement proportionnelle à la réfringence du matériau dans lequel la lumière se propage. La théorie corpusculaire qui prévoyait l'inverse est alors clairement mise en défaut. La théorie ondulatoire semble alors supplanter la théorie corpusculaire. C'est sans compter sur l'observation de l'effet photoélectrique par Heinrich Rudolf Hertz, et l'explication du rayonnement du corps noir de Max Planck qui remettent en cause l'aspect purement ondulatoire de l'onde électromagnétique. Finalement, et sans renier cet aspect ondulatoire, Albert Einstein réintroduira théoriquement l'idée de corpuscule, non pas de matière mais d'énergie. Cette nouvelle théorie sera finalement confirmée par les expériences de Robert Andrews Millikan malgré ses propres réticences. Mais loin de dissocier l'onde et la matière, cette théorie naissante va bouleverser notre représentation de l'interaction entre les ondes et la matière. Avec la théorie de la dualité onde-corpuscule, les portes du monde quantique se sont ouvertes, et nous sommes probablement loin de les refermer. A l'image du 'tube optique', le laser est aujourd'hui une des applications les plus marquantes qui en découle et qui sert notre quotidien de multiples façons. De nombreuses analogies ont également été faites depuis entre la matière et la lumière, et le but de la nanophotonique est aujourd'hui de contrôler à l'échelle de quelques longueurs d'onde la propagation de la lumière, voir du photon unique dans des structures matérielles. Dans ce but, il est essentiel de comprendre les interactions entre la lumière et la matière, afin d'utiliser au mieux chacune de leurs propriétés. C'est dans ce contexte que se situe cette thèse : améliorer le contrôle et la compréhension des interactions entre la lumière et la matière.

## Introduction de la thèse

Cette thèse a donc pour but d'approfondir les connaissances de l'interaction entre le champ électromagnétique et la matière. Pour cela, les différents travaux réalisés se basent sur un outil de caractérisation particulièrement adapté à l'observation des phénomènes intimes d'interaction entre l'onde et la matière : le microscope optique de champ proche. Ce microscope particulier ne limite pas son champ d'action aux ondes qui se propagent jusqu'à l'observateur, il va sonder la répartition de l'intensité du champ électromagnétique au plus près de la matière ( $\sim$ quelques nm au dessus de la surface de l'échantillon). Cet outil de caractérisation sera présenté dans la première partie de ce manuscrit. Après avoir présenté la microscopie 'classique', nous présenterons en détail les phénomènes mis en jeu dans l'utilisation des microscopes de champ proche. Nous en profiterons pour montrer quels sont les avantages de venir mesurer au plus près de l'échantillon l'intensité du champ présent.

Nous développerons ensuite en détail les études réalisées lors de cette thèse. Ces études se répartissent en deux grandes parties, mais relèvent toutes deux de l'étude en champ proche de résonance électromagnétique. En effet, pour obtenir une interaction optimale entre l'onde et la matière, nous nous sommes intéressés au phénomène de résonance. D'une manière générale, la mise en résonance d'un objet résulte de l'accord entre les modes propres de l'objet étudié et l'excitateur qui lui apporte l'énergie. L'optimisation de cet accord est à la base de nombreuses études menées en Physique.

Les études réalisées lors de cette thèse confirment ainsi l'importance de la recherche théorique des modes propres associés au système étudié en fonction de l'excitateur. Ces modes propres ont des structures particulières dont les caractéristiques sont définies par les paramètres géométriques de l'objet étudié et la forme de l'excitateur, via la résolution du problème homogène. L'excitation résonante de ces modes propres du système génère une accumulation de l'énergie dans le système particulièrement attractive. En effet, pour une énergie minimale fournie au système, la résonance peut permettre d'amplifier très significativement la réponse de l'objet, comme nous le verrons dans la deuxième partie de ce manuscrit.

Cette seconde partie concerne l'étude de nano-cavités Fabry-Perot. Malgré les très faibles puissances injectées ( $\sim \mu\text{W}$ ), la surtension du champ due au fort coefficient de qualité des cavités étudiées permet l'étude du régime non-linéaire des cavités. L'interaction du champ et de la matière conduit alors à l'apparition d'effets non-linéaires que nous avons étudié en détail à l'aide d'un modèle simple. Enfin, nous avons montré que le contrôle de l'interaction du champ électromagnétique hors de la cavité avec la sonde champ proche du microscope permet de contrôler le régime de fonctionnement des cavités.

Cette première étude a confirmé l'intérêt à la fois fondamental et pratique de l'étude champ proche de la mise en résonance du champ électromagnétique avec l'objet étudié. L'utilisation d'un modèle théorique nous a permis d'obtenir des informations essentielles à notre étude.



Nous avons donc utilisé la même méthodologie pour la seconde étude réalisée lors de cette thèse. Présentée dans la troisième partie de ce manuscrit, cette étude est consacrée à l'excitation de films minces métalliques par des ondes électromagnétiques. L'interaction qui en résulte mène à l'apparition de modes résonants particuliers connus sous le terme de plasmons-polaritons de surface.

Dans cette troisième partie, nous avons choisi d'approfondir notre compréhension du phénomène de résonance proprement dit. Cette réflexion nous a permis d'utiliser au mieux le modèle théorique développé afin de rechercher les courbes de dispersion exactes d'un film mince continu excité par des ondes planes en régime harmonique. La connaissance précise de l'ensemble de ces courbes de dispersion est essentielle pour discuter les différentes possibilités d'excitation résonante d'un film mince. Toujours dans le régime harmonique, nous avons ensuite étudié expérimentalement la réponse à une excitation locale des modes résonants par une discontinuité unique introduite dans le film continu. Les résultats obtenus, appuyés à l'aide de simulations numériques ont permis d'associer les modes observés aux modes calculés théoriquement pour des films minces continus.

Dans une dernière partie, nous présentons enfin les conclusions tirées des travaux réalisés lors de cette thèse et les différentes perspectives qui se présentent maintenant.

## 1<sup>ère</sup> Partie:

# Introduction à la microscopie champ proche

*Natura enim non nisi parendo vincitur.*

Francis Bacon (1561-1626)

## I. La microscopie optique

La lumière est un excellent moyen de communication avec la matière. Lorsqu'on observe un objet à l'œil nu ou au microscope, les informations qui nous parviennent sont obtenues via la lumière, et plus généralement via les ondes électromagnétiques. Celles-ci sont émises ou diffractées à la surface de l'objet, et celles qui sont détectées permettent finalement de reconstituer l'image de l'objet étudié.

### I.1. Microscopie optique classique et limitation

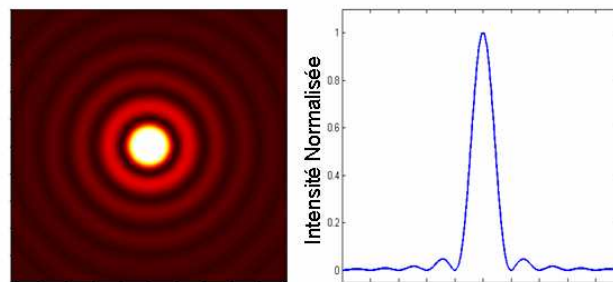
#### I.1.a. Les microscopes

La microscopie consiste à préciser les détails invisibles à l'œil nu d'un objet étudié. Le dictionnaire définit en effet le microscope comme un instrument d'optique permettant de dépasser la capacité de discernement de l'œil nu. Plus généralement, on parlera du 'pouvoir de résolution'. Ce 'pouvoir de résolution' (latérale) est un critère d'évaluation des microscopes et globalement des différents outils permettant d'imager un objet [Rayleigh1879]. Il est défini comme la capacité à distinguer, grâce à l'image obtenue, deux sources ponctuelles très rapprochées. En effet, en dessous d'une certaine distance les séparant, elles seront vues

comme un unique point source. On classe alors les microscopes dans deux grandes catégories, les microscopes dits 'classiques' ou 'champ lointain', et les microscopes 'champ proche'. A cette dénomination est liée leur capacité à dépasser ou non la limite de résolution latérale appelée critère de Rayleigh-Abbe. Il peut paraître curieux d'associer la résolution latérale d'un microscope, à une notion qui fait référence à la distance qui le sépare de l'objet étudié (microscopie champ lointain ou champ proche). Pour expliquer cette surprenante association, nous allons expliciter le critère de Rayleigh-Abbe, puis nous verrons pourquoi et comment la microscopie champ proche permet de dépasser cette limite.

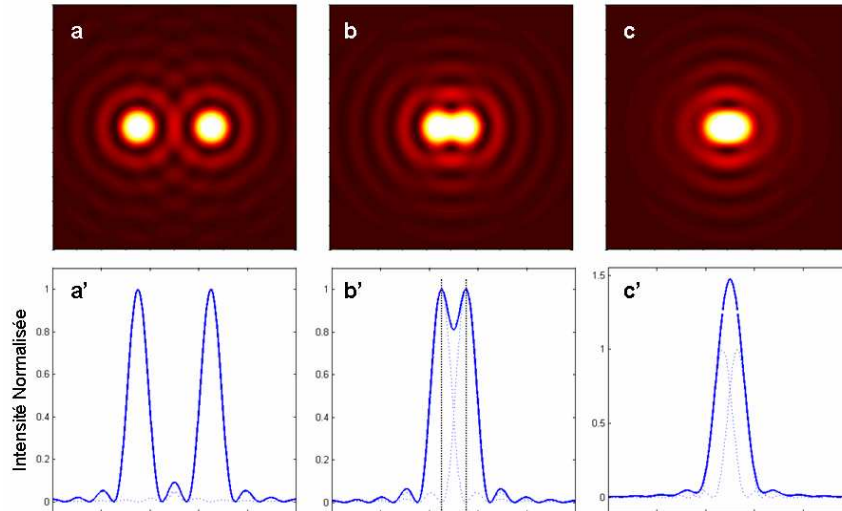
### I.1.b. Le critère de Rayleigh-Abbe

Dans le cas de la microscopie champ lointain, les ondes mises en jeu sont dites 'radiatives' (particularité que nous repréciserons par la suite). Ces ondes électromagnétiques sont les ondes qui se propagent sans atténuation dans le milieu séparant l'objet étudié et l'observateur. En effet, si l'on considère une observation effectuée dans le domaine de la lumière dite visible par exemple, les ondes participant à la construction de l'image se sont éloignées de l'objet d'un grand nombre de fois leur longueur d'onde avant d'être détectées. Cette distance parcourue est à l'origine du critère de Rayleigh-Abbe et de la qualification de microscopie champ lointain. Lorsqu'on étudie un objet via ces ondes radiatives, l'image d'un point source au travers d'un microscope (à symétrie circulaire) est représentée par la figure d'Airy (Figure I-1) [Born&Wolf80].



**Figure I-1: Image (figure d'Airy) et coupe transversale de l'image d'un point source unique au travers d'un microscope à symétrie circulaire**

Avec un microscope champ lointain idéal, on va maintenant observer deux sources ponctuelles proches l'une de l'autre (Figure I-2). On veut tenter de connaître la distance minimale en dessous de laquelle les deux points sources ne pourront plus être distingués l'un de l'autre et seront donc observés comme un point source unique.



**Figure I-2: Images (a,b&c) et coupes transversales (a',b'&c') de deux points sources ; résolu (a&a'), séparés de la distance définie par le critère de Rayleigh-Abbe (b&b'), non résolu (c&c')**

En fait on estime que si le maximum de chacune des figures d'Airy se trouve au-delà des premiers minima de l'autre, les images de ces points sources ne peuvent être séparées [Born&Wolf80]. Cette reformulation qui est équivalente au critère de Rayleigh-Abbe, est illustrée sur la Figure I-2. Sur les figures a&a', la distance séparant les deux points sources est supérieure à la distance définie par le critère de Rayleigh-Abbe. On différencie clairement les deux points sources. Sur les figures b&b', les deux points sources sont séparés par la distance minimale permettant de distinguer chacun des points sources. Enfin, les figures c&c', présentent deux points sources qui ne peuvent pas être distingués en microscopie champ lointain. Cette description qualitative peut-être résumée par l'expression suivante

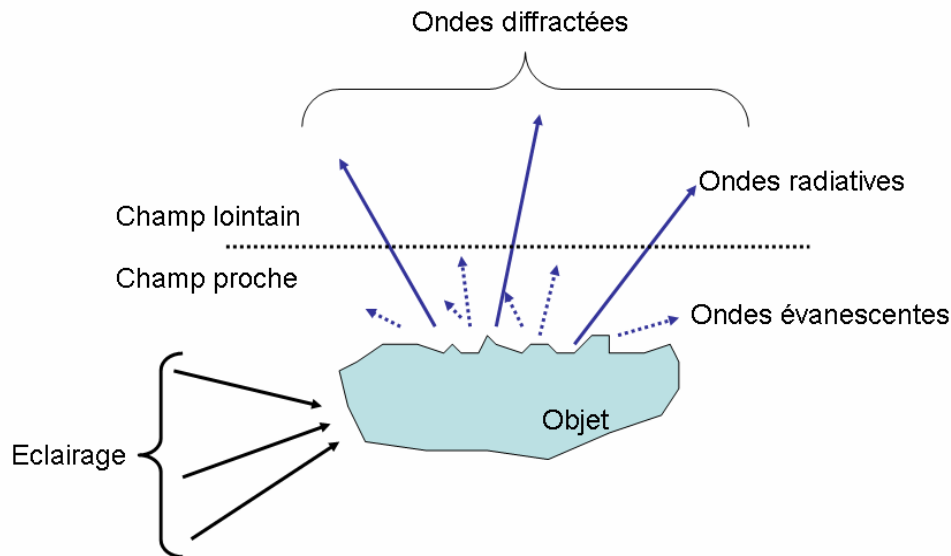
$$d = \frac{0.61\lambda}{n \sin(\theta)},$$

qui permet de calculer la meilleure résolution latérale 'd' séparant deux points

sources que l'on peut obtenir avec un microscope champ lointain [Abbe1873]. On trouve dans cette formule les principales variables ajustables qui permettent d'augmenter la résolution latérale des microscopes classiques. On cherche par exemple, à diminuer la longueur d'onde de travail  $\lambda$  dans le cas des microscopies UV, X ou électronique. On peut également utiliser des objectifs limitant l'ouverture angulaire  $\theta$  du microscope, ou bien encore utiliser des objectifs à immersion pour augmenter l'indice  $n$  du milieu dans lequel on observe l'objet. On diminue ainsi la valeur absolue de cette limite, mais ce critère reste inviolé. En effet, celui-ci est inhérent au principe même de la microscopie champ lointain, basée sur l'observation des ondes diffractées par l'objet étudié, puis propagées dans la direction de l'observateur.

En fait, si l'on fait la distinction entre le champ proche et le champ lointain, c'est que l'interaction d'un objet avec les ondes incidentes ne génère pas uniquement des ondes radiatives. Des ondes dites évanescentes sont également créées. Ces ondes s'atténuent très rapidement à mesure que l'on s'éloigne de l'objet étudié, et ne participent pas à la formation de l'image en microscopie champ lointain. On peut alors considérer que la propagation agit comme un filtre définissant une zone géographique limitée aux abords de l'échantillon où se

côtoient ondes dites 'évanescences' et 'radiatives'. On définit ainsi le 'champ proche' de l'échantillon comme la zone où se côtoient ces deux types d'ondes, et plus précisément, celle où les ondes évanescences n'ont été que peu atténuées. Les microscopes en champ proche seront donc les microscopes capables de collecter les deux types d'ondes.



**Figure I-3: Schéma de l'interaction d'ondes électromagnétiques avec un objet diffractant.**

Après avoir succinctement rappelé les équations de Maxwell, nous allons maintenant préciser les différentes caractéristiques de l'onde électromagnétique et les équations qui régissent la propagation de cette onde. Nous illustrerons la création des ondes dites 'évanescences' et nous expliciterons ensuite l'effet de filtre de la propagation, montrant ainsi la nécessité de collecter ces ondes particulières pour dépasser la limite de résolution latérale des microscopes en champ lointain.

## I.2. Onde électromagnétique et propagation

### I.2.a. Rappel des équations de Maxwell

En 1864, James Clerk Maxwell présente à la 'London Royal Society' [Maxwell1865] l'aboutissement d'une synthèse des différentes recherches effectuées par certains de ses prédécesseurs et de ses contemporains pour comprendre les phénomènes électrique d'une part et magnétique d'autre part. C'est la naissance de ce que l'on appelle aujourd'hui « l'électromagnétisme ». Sous une même théorie, il unifie grâce à quatre équations les différents champs observés :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \nabla \wedge \vec{E} = -\partial_t \vec{B} & \text{Eq. I-1, dite de Maxwell-Faraday} \\ \nabla \wedge \vec{H} = \vec{j} + \partial_t \vec{D} & \text{Eq. I-2, dite de Maxwell-Ampère} \\ \nabla \cdot \vec{D} = \rho & \text{Eq. I-3, dite de Maxwell-Gauss} \\ \nabla \cdot \vec{B} = 0 & \text{Eq. I-4, dite de Maxwell-Thomson} \end{array} \right.$$

Ces équations relient les variations dans l'espace et dans le temps des champs électrique et magnétique, respectivement  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$ .  $\vec{D}$  et  $\vec{B}$  sont définis par les équations constitutives tels que  $\vec{D} = \varepsilon \vec{E}$  et  $\vec{B} = \mu \vec{H}$ . La permittivité diélectrique  $\varepsilon$  et la perméabilité magnétique  $\mu$  sont respectivement égales au produit de la permittivité et perméabilité dans le vide avec celle du matériau,  $\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r$  et  $\mu = \mu_0 \mu_r$ . Dans notre cas, on considèrera des matériaux non-magnétiques dont la perméabilité  $\mu_r = 1$ , et aucune source de courant. Le vecteur densité de courant sera donc nul  $\vec{j} = \vec{0}$ .  $\rho$  désigne la densité volumique de charge.  $\nabla = (\partial_x, \partial_y, \partial_z)$  représente l'opérateur de dérivation dans l'espace et  $\partial_t$  la dérivée par rapport au temps, avec dans un but de simplification  $\partial_\alpha \Leftrightarrow \frac{\partial}{\partial \alpha}$  avec  $\alpha \in \{x, y, z, t\}$ .

A partir des équations précédentes, on définit, dans un milieu homogène et isotrope, les équations dites de propagation du champ électrique  $\vec{E}$  et magnétique  $\vec{H}$  :

$$\begin{array}{ll} \checkmark \quad \nabla^2 \vec{E} - \mu \varepsilon \partial_t^2 \vec{E} = \vec{0} & \text{Eq. I-5, dites de propagation} \\ \checkmark \quad \nabla^2 \vec{H} - \mu \varepsilon \partial_t^2 \vec{H} = \vec{0} & \text{ou d'Helmholtz} \end{array}$$

dans lesquelles on trouve l'opérateur Laplacien  $\nabla^2 = (\partial_x^2, \partial_y^2, \partial_z^2)$ . On montre alors que les solutions de cette équation différentielle sous forme d'ondes électromagnétiques monochromatiques de pulsation  $\omega$  et de vecteur d'onde  $\vec{k} = (k_x, k_y, k_z)$  peuvent s'écrire sous la forme :  $\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}$  avec  $\vec{r} = (x, y, z)$  le vecteur position et  $\vec{E}_0 = (E_{0x}, E_{0y}, E_{0z})$ . Pour une onde de longueur d'onde  $\lambda_0$  et de vitesse  $c$  dans le vide, en considérant la période

temporelle et spatiale de l'onde, on déduit les égalités suivantes  $\omega = \frac{2\pi c}{\lambda_0}$  et  $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_0} = \frac{\omega}{c}$ .

Dans le cas général d'un matériau d'indice  $n$  tel que  $n^2 = \varepsilon_r$ , la première égalité reste valable. C'est donc la pulsation  $\omega$  qui caractérisera l'onde. On définit enfin pour les composantes du vecteur d'onde  $\vec{k}$  la relation de dispersion suivante  $\vec{k} \cdot \vec{k} = (k_0)^2 \varepsilon_r$ .

On définit l'intensité d'une telle onde électromagnétique (EM), telle que  $I = \|\vec{E}_0\|^2 = \vec{E} \cdot \vec{E}^*$ . On définit également le vecteur déplacement de l'énergie de cette onde EM, plus connu sous le terme de 'vecteur de Poynting', moyenné dans le temps tel que  $\langle \vec{\Pi} \rangle_t = \frac{1}{2} \text{Re}(\vec{E} \wedge \vec{H}^*)$ . Cette expression se simplifie dans le cas d'une onde plane progressive

monochromatique (OPPM), on a alors  $\langle \vec{\Pi} \rangle_t = \frac{1}{2\mu\omega} \text{Re}(\vec{k}) \vec{E} \cdot \vec{E}^* = \frac{I}{2\mu\omega} \text{Re}(\vec{k})$ .

Avant de conclure ce rappel sur les équations de Maxwell, nous allons énoncer ce que l'on appelle les conditions aux limites. Elles découlent de la conservation des champs électrique et magnétique et des densités de flux. Considérant des milieux non magnétiques dans lesquels  $\vec{j} = \vec{0}$  et une densité de charge surfacique nulle  $\rho_s = 0$ , lors du passage entre deux milieux de permittivités diélectriques différentes  $\varepsilon_1$  et  $\varepsilon_2$  séparés par une interface dont le vecteur normal unitaire est  $\vec{N}$ , elles se déclinent sous la forme des quatre conditions suivantes :

$$\checkmark \quad \vec{N} \cdot (\vec{D}_2 - \vec{D}_1) = 0 \quad (\text{Cond. 1})$$

$$\checkmark \quad \vec{N} \wedge (\vec{E}_2 - \vec{E}_1) = \vec{0} \quad (\text{Cond. 2})$$

$$\checkmark \quad \vec{N} \cdot (\vec{B}_2 - \vec{B}_1) = 0 \quad (\text{Cond. 3})$$

$$\checkmark \quad \vec{N} \wedge (\vec{H}_2 - \vec{H}_1) = \vec{0} \quad (\text{Cond. 4})$$

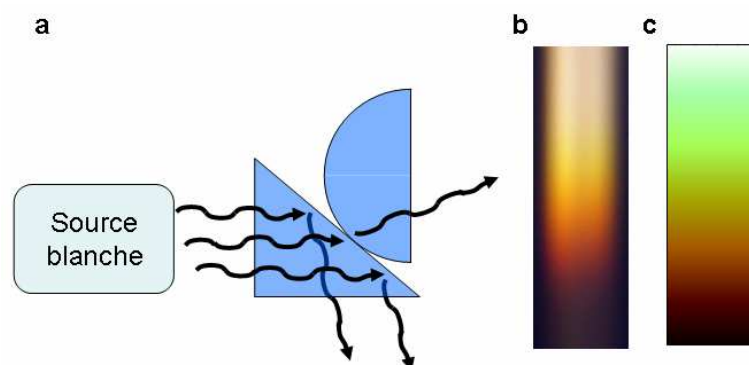
Suivant le formalisme mathématique énoncé dans ce paragraphe, une onde électromagnétique est dite radiative suivant un axe de propagation si la composante de son vecteur d'onde est réelle sur cet axe, et évanescence si elle est imaginaire. Dans le cas de composantes complexes on utilisera un anglicisme, on parlera d'ondes propagatives amorties ou amplifiées.

Ce rappel théorique est maintenant terminé. Nous allons nous appuyer sur ces définitions pour montrer tout l'intérêt de recueillir les ondes évanescences afin d'augmenter la résolution de la microscopie classique. Mais avant, nous allons ouvrir une courte parenthèse expérimentale pour présenter l'expérience dite de Newton. Cette expérience relativement simple à mettre en oeuvre permet d'illustrer la création des ondes évanescences à la surface d'un prisme ainsi que l'effet dit 'tunnel', deux phénomènes particulièrement importants en microscopie champ proche.

## I.2.b. L'expérience de Newton

Historiquement, la première vérification expérimentale de l'existence des ondes évanescentes est attribuée à Newton. L'expérience est basée sur la frustration des ondes évanescentes générées par un faisceau de lumière blanche en réflexion totale dans un prisme [deFornel97],[Vigoureux03]. Lorsqu'un faisceau de lumière est dirigé depuis un prisme vers sa surface, il existe un angle d'incidence critique au-delà duquel on observe l'extinction de la partie transmise du faisceau. Le faisceau est alors totalement réfléchi dans le prisme, on parle de réflexion totale interne. Malgré cette réflexion totale, il existe une onde qui se propage parallèlement à la surface et s'étend hors du prisme. Il est alors possible, en approchant suffisamment un second prisme d'obtenir le phénomène inverse. L'onde de surface hors du prisme est en partie transformée en onde radiative dans le second prisme, on parle dans ce cas de frustration de la réflexion totale et une partie de l'onde incidente est alors transmise dans le second prisme par effet tunnel.

Dans l'expérience de Newton on observe donc un faisceau de lumière blanche en réflexion totale interne. Pour frustrer les ondes évanescentes ainsi créées, on approche un second prisme présentant un grand rayon de courbure (Figure I-4-a). Idéalement, il existe une seule ligne de contact entre ces deux prismes. Sur cette ligne, toutes les composantes de la lumière blanche sont transmises du premier vers le second prisme. De chaque côté de cette ligne, la lumière est transmise par effet tunnel au travers de l'espace qui sépare les deux surfaces. On peut alors observer l'image de la partie transmise du faisceau. Pour la lumière visible, la tache réalisée présente une évolution du blanc (somme de toutes les composantes du faisceau incident) vers le noir, en soustrayant progressivement les composantes de l'arc-en-ciel en commençant par les faibles longueurs d'ondes (Figure I-4-b&c). En effet, on verra dans le paragraphe suivant que la longueur de pénétration de l'onde évanescente dans le second milieu est proportionnelle à la longueur d'onde considérée. De ce fait, l'augmentation progressive de l'espace due à la courbure du second prisme modifie progressivement la transmission du faisceau par effet tunnel en fonction de l'extension de chacune des composantes de la lumière blanche à l'extérieur du prisme. On passe donc progressivement de la zone de contact où toutes les composantes sont transmises vers une zone d'espacement qui ne permet plus aucune transmission par effet tunnel des composantes visibles du faisceau.



**Figure I-4: (a) Schéma de principe de l'expérience de frustration des ondes évanescentes de Newton et images de la transmission expérimentale (b) et théorique (c) obtenues.**



Fort de cette observation expérimentale, nous allons maintenant expliciter la formation des ondes évanescentes générées en réflexion totale avec un prisme, avant de présenter l'effet de la propagation sur de telles ondes.

### I.2.c. Réflexion, réfraction et onde évanescente

Nous allons calculer les champs électriques réfléchis et transmis qui sont générés par l'interaction d'un champ électrique incident avec l'interface séparant deux milieux d'indices différents. Lorsqu'une onde EM définie comme précédemment rencontre une interface elle peut être réfléchi et/ou transmise comme l'illustre la Figure I-5. Pour simplifier les calculs, nous nous placerons dans un repère où  $\phi = 0$ .

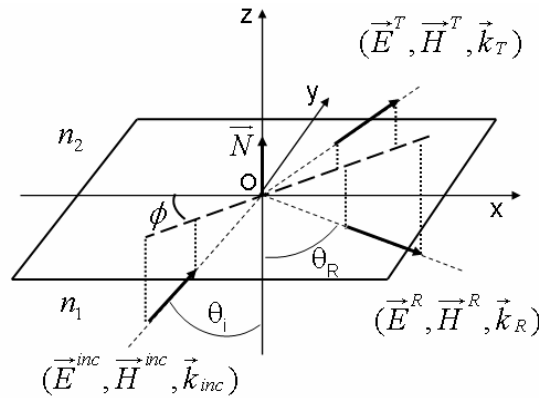


Figure I-5: Schéma de l'interaction d'une onde avec une unique interface

L'OPPM incidente présente un angle  $\theta_i$  avec la normale  $\vec{N}$  au plan Oxy. Elle est décrite par le champ électrique incident  $\vec{E}^{inc}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0^{inc} e^{i(\vec{k}_{inc} \cdot \vec{r} - \omega t)}$  et a pour vecteur d'onde  $\vec{k}_{inc} = (k_0 n_1 \sin(\theta_i), 0, k_0 n_1 \cos(\theta_i))$ . Les ondes réfléchies et transmises ont la même pulsation mais des vecteurs d'onde  $\vec{k}$  différents;  $\vec{E}^R(\vec{r}, t) = \vec{E}_0^R e^{i(\vec{k}_R \cdot \vec{r} - \omega t)}$  et  $\vec{E}^T(\vec{r}, t) = \vec{E}_0^T e^{i(\vec{k}_T \cdot \vec{r} - \omega t)}$ . A l'interface, dans le plan Oxy, toutes les phases  $(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)$  des ondes sont identiques, ce qui implique les différentes égalités suivantes :

$$\checkmark \quad \vec{k}_{inc} \cdot \vec{r} - \omega t = \vec{k}_R \cdot \vec{r} - \omega t = \vec{k}_T \cdot \vec{r} - \omega t \quad \Rightarrow \quad \vec{k}_{inc} \cdot \vec{r} = \vec{k}_R \cdot \vec{r} = \vec{k}_T \cdot \vec{r} \quad \text{Eq. I-6}$$

Dans un premier temps, on en déduit que tous les vecteurs d'onde considérés sont coplanaires. Dans notre cas, ils appartiennent tous au plan Oxz. On peut alors écrire que  $\vec{k}_R = (k_0 n_1 \sin(\theta_R), 0, -k_0 n_1 \cos(\theta_R))$  et  $\vec{k}_T = (k_0 n_2 \sin(\theta_T), 0, k_0 n_2 \cos(\theta_T))$ . Dans un deuxième temps, en projetant la double égalité de l'équation Eq. I-6 sur l'axe Ox, on obtient les égalités suivantes  $k_0 n_1 \sin(\theta_i) = k_0 n_1 \sin(\theta_R) = k_0 n_2 \sin(\theta_T)$ . On retrouve ici la première loi de la réflexion  $\theta_R = \theta_i$  et la loi de réfraction dite de Snell-Descartes  $n_1 \sin(\theta_i) = n_2 \sin(\theta_T)$ . Il faut également que la relation de dispersion sur les composantes des vecteurs d'ondes dans chacun des milieux soit vérifiée, on a donc  $k_x^2 + k_z^2 = k_0^2 n_i^2$ ,  $i \in [1, 2]$ . Dans le cas le plus général, la

composante  $k_z$  alors déduite en fonction de  $k_x$  est connue à un signe près dans chacun des milieux. Le champ exact dans les différents milieux est alors une superposition de deux ondes planes de composantes  $k_x$  égales et  $k_z$  opposées ( $\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{A}^+ e^{i(k_x x + k_z z - \omega t)} + \vec{A}^- e^{i(k_x x + (-k_z)z - \omega t)}$ ). Cependant, les conditions expérimentales, notamment la condition d'onde sortante impose une valeur nulle à l'amplitude complexe de certaines des ondes. Ce sont les conditions expérimentales qui permettent alors de définir clairement les ondes présentes. On peut expliciter les valeurs des composantes des vecteurs d'ondes réfléchis et transmis en fonction de celles du vecteur d'onde dans le vide, de l'angle d'incidence et de l'indice de réfraction des deux milieux,  $\vec{k}_R = (k_0 n_1 \sin(\theta_i), 0, k_0 n_1 \cos(\theta_i))$  et  $\vec{k}_T = (k_0 n_1 \sin(\theta_i), 0, -k_0 \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2(\theta_i)})$ .

On remarque alors que, si  $n_1 < n_2$ , le passage de l'interface par l'onde est bien défini pour tout angle  $\theta_i$ . En effet, les lois de réflexion et de réfraction et les expressions des différents vecteurs d'ondes ne présentent pas de singularités.

Si maintenant  $n_1 > n_2$ , on peut définir un angle critique  $\theta_c$  tel que  $\sin(\theta_c) = \frac{n_2}{n_1}$ , dans ce

cas, si  $\theta_i > \theta_c$  la loi de Snell-Descartes n'a plus de solution réelle et  $k_{Tz} = \pm k_0 \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2(\theta_i)}$  est un nombre imaginaire pur. En fait, la valeur de la composante  $k_x$  de l'onde incidente est supérieure à  $k_0 n_2$ , la valeur de la droite de lumière à la pulsation de l'onde. Dans le second milieu, l'onde est donc purement évanescente suivant l'axe Oz. L'amplitude complexe de l'onde transmise dont la composante  $k_z$  implique une amplification de champ en s'éloignant de l'interface est nulle puisque le champ ne diverge pas à l'infini. C'est la condition d'onde sortante. L'amplitude de l'onde transmise décroît donc en s'éloignant de l'interface. On définit alors la longueur de pénétration de l'onde dans le milieu le moins réfringent  $d_p = \frac{1}{\text{Im}(k_{Tz})}$ . La

longueur de pénétration dans le milieu est donc proportionnelle à la longueur d'onde.

Pour mieux comprendre ce qui se passe dans une telle configuration on calcule alors les flux de vecteur de Poynting projetés sur l'axe Oz des différentes ondes mises en jeu. Pour simplifier le raisonnement on introduit des coefficients de réflexion et de transmission du système considéré, respectivement r et t. Plus connus sous les termes de coefficients de Fresnel de réflexion et de transmission, ils sont définis tels que  $\vec{E}_0^R = r \vec{E}_0^{inc}$  et  $\vec{E}_0^T = t \vec{E}_0^{inc}$ . On a alors :

$$\checkmark \quad \vec{N} \cdot \langle \vec{\Pi}(E^{inc}) \rangle_t = \frac{1}{2\mu\omega} \text{Re}(\vec{N} \cdot \vec{k}_{inc}) \|\vec{E}_0^{inc}\|^2$$

$$\checkmark \quad \vec{N} \cdot \langle \vec{\Pi}(E^R) \rangle_t = \frac{\|r\|^2}{2\mu\omega} \text{Re}(\vec{N} \cdot \vec{k}_R) \|\vec{E}_0^{inc}\|^2$$

$$\checkmark \quad \vec{N} \cdot \langle \vec{\Pi}(E^T) \rangle_t = \frac{\|t\|^2}{2\mu\omega} \text{Re}(\vec{N} \cdot \vec{k}_T) \|\vec{E}_0^{inc}\|^2$$

On voit donc ici que le flux de vecteur de Poynting transmis est proportionnel à la partie réelle de  $k_{Tz}$  qui est nulle puisque  $k_{Tz}$  est un imaginaire pur. Dans ce cas, bien qu'une onde existe dans le milieu le moins réfringent, la projection sur l'axe Oz du vecteur de Poynting moyenné dans le temps et associé à cette onde est nul.

Nous avons donc explicité la création des ondes évanescentes par réflexion totale interne et leur atténuation perpendiculairement à l'interface. Nous allons maintenant étudier dans le cas de surfaces plus complexes quel peut être l'effet de la propagation sur les ondes évanescentes. Nous expliquerons ainsi pourquoi ces ondes évanescentes ne participent pas à la formation des images en champ lointain et pourquoi leur mesure permet d'augmenter la résolution des images obtenues.

#### I.2.d. La propagation, un filtre passe bas des fréquences spatiales

Regardons l'évolution du signal diffracté par une surface rugueuse dont on connaît complètement la valeur de champ  $\vec{E}$  associé dans le plan Oxy en  $z=0$  [Courjon01]. On peut calculer à partir de l'espace de Fourier l'amplitude du champ  $\vec{E}$  tel que  $E(x, y, z) = \iint \tilde{E}(u, v, z) e^{i(ux+vy)} dudv$  avec  $u$  et  $v$  les fréquences spatiales associées respectivement aux axes Ox et Oy. L'équation de propagation dans le vide, avec  $k = \frac{\omega}{c}$  peut s'écrire sous la forme suivante

$$\checkmark \quad \partial_z^2 \tilde{E}(u, v, z) + (k^2 - u^2 - v^2) \tilde{E}(u, v, z) = 0 \quad \text{Eq. I-7}$$

Observant alors la propagation dans le sens des  $z > 0$ , avec en  $z = 0$   $\tilde{E}(u, v, 0)$ , l'équation Eq. I-7 a deux types de solutions possibles :

$$\begin{cases} \tilde{E}(u, v, z) = \tilde{E}(u, v, 0) e^{i(\sqrt{k^2 - u^2 - v^2})z} & \text{si } u^2 + v^2 < k^2 \\ \tilde{E}(u, v, z) = \tilde{E}(u, v, 0) e^{-(\sqrt{u^2 + v^2 - k^2})z} & \text{si } u^2 + v^2 > k^2 \end{cases}$$

On en déduit que l'amplitude globale du champ  $\vec{E}$  dans l'espace direct pour les valeurs de  $z > 0$  peut s'écrire sous la forme suivante

$$\checkmark \quad E(x, y, z) = \iint_{u^2 + v^2 < k^2} \tilde{E}(u, v, 0) e^{i(\sqrt{k^2 - u^2 - v^2})z} e^{i(ux+vy)} dudv + \iint_{u^2 + v^2 > k^2} \tilde{E}(u, v, 0) e^{-(\sqrt{u^2 + v^2 - k^2})z} e^{i(ux+vy)} dudv \quad \text{Eq. I-8}$$

Le premier terme de cette expression est limité aux basses fréquences spatiales telles que  $u^2 + v^2 < \left(\frac{\omega}{c}\right)^2$ . Les ondes satisfaisant cette condition sont radiatives. On remarque ensuite que dans le second terme de cette expression, l'intégrale sur les hautes fréquences

spatiales (i.e. sur les plus petits détails) est associée à des ondes qui décroissent de façon exponentielle suivant  $z$ . La propagation atténuée donc rapidement la contribution de ces ondes à l'amplitude du champ total diffracté. Elle agit donc bien comme un filtre passe bas sur les fréquences spatiales associées à l'échantillon. De plus, perpendiculairement au plan de l'échantillon et pour des fréquences spatiales  $f$  dans le plan de l'échantillon, telles que  $f \gg \frac{\omega}{c}$ , la composante  $k_z$  du vecteur d'onde peut être considérée comme imaginaire pure.

Ces ondes sont donc bien évanescentes. On note alors que l'amplitude du champ  $\vec{E}$  des ondes associées décroît d'un facteur  $e$  à une distance de  $z = \frac{1}{2\pi f}$ . Plus la fréquence  $f$  est élevée et plus l'information sera confinée près de la structure. Cette relation permet alors une estimation de ce que l'on a défini comme le champ proche de l'objet [Courjon01].

A l'aide du principe d'incertitude d'Heisenberg, on peut également confirmer le fait que les informations concernant les détails les plus fins de l'échantillon sont associées à la partie non-radiative du spectre diffracté par la surface de l'échantillon [Vigoureux92]. Ce théorème précise en effet, que le produit de l'incertitude de la position d'une particule par celle de sa vitesse a une borne inférieure. Dans cette publication, les auteurs ont montré qu'en considérant le couple position-vecteur d'onde, on peut écrire l'inéquation suivante

$$\checkmark \quad \Delta x \Delta k_x > 2\pi \quad \text{Eq. I-9}$$

Ce qui implique que pour avoir une grande résolution ( $\Delta x$  petit), il faut que l'intervalle  $\Delta k_x$  des valeurs des vecteurs d'ondes  $k_x$  dans le plan soit le plus grand possible. Or le spectre des ondes radiatives est limité à  $\left[ \frac{-2\pi}{\lambda}; \frac{2\pi}{\lambda} \right]$ , ce qui implique une résolution limite égale à  $\frac{\lambda}{2}$  dans le vide.

Pour augmenter la résolution des images obtenues, il est donc nécessaire de collecter les ondes dont les vecteurs d'onde dans le plan ont une valeur supérieure à  $\frac{2\pi}{\lambda}$ . Ce sont précisément ceux qui sont associés aux ondes évanescentes, et dont la propagation depuis la surface atténuée rapidement l'amplitude. Pour dépasser le critère de Rayleigh et ainsi obtenir des résolutions supérieures, il faut donc limiter l'effet de la propagation sur les ondes évanescentes. Dans ce but, on va tenter de détecter les ondes associées aux hautes fréquences spatiales là où elles se trouvent, c'est à dire dans le champ proche de l'échantillon. C'est le principe sur lequel se basent les microscopes de champ proche optique (ou SNOM<sup>1</sup>). Ce type de microscope permet en effet de transformer en ondes radiatives les ondes évanescentes générées à la surface de l'échantillon étudié. Nous allons maintenant présenter les différentes caractéristiques de ce type de microscope.

---

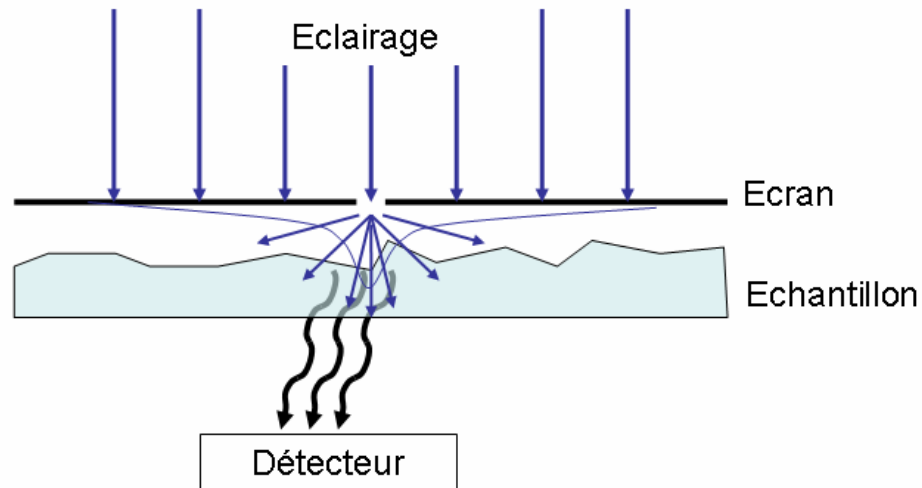
<sup>1</sup> De l'anglais: Scanning Near-Field Optical Microscope

## **II. La microscopie en champ proche optique**

L'optique n'est pas le seul domaine de la physique dans lequel la microscopie champ proche est mise en œuvre. Il existe en effet différents types de microscope en champ proche basés sur 'l'effet de pointe' comme le STM ('Scanning Tunneling Microscope') ou l'AFM ('Atomic Force Microscope'). On parle de microscopie champ proche à sonde locale. La réalisation du premier STM a valu à ses inventeurs G. Binnig et H. Röhler le Prix Nobel de physique en 1986 [Binnig82]. Le balayage de la sonde est basé sur les variations de l'intensité du courant tunnel qui peut s'établir en rapprochant une sonde et une surface conductrices. Cette intensité, dépendante de la distance sonde-surface permet de sonder au plus près les propriétés électroniques de l'échantillon. L'AFM est lui basé sur la mesure des très faibles forces interatomiques entre la pointe et la surface de l'échantillon [Binnig86]. Considérant les longueurs d'ondes associées aux objets étudiés, ces deux types de microscope permettent d'imager des surfaces avec des résolutions record de l'ordre de quelques angströms. Le SNOM est également classé dans la catégorie des microscopes champ proche à sonde locale. Comme on l'a vu précédemment, la résolution dépend des ondes évanescentes associées aux hautes fréquences spatiales et dont l'extension est la plus faible dans le milieu d'étude. La résolution est donc limitée par la distance qui sépare la sonde de la surface de l'échantillon [VanLabeke97]. En pratique, la résolution est inférieure à celle d'un STM ou d'un AFM mais le SNOM permet généralement d'obtenir avec l'image topographique de l'échantillon l'image du champ électromagnétique associé.

### **II.1. Principe de fonctionnement du SNOM**

On attribue l'idée fondatrice de la microscopie en champ proche optique à E.H. Syngé [Syngé28],[Novotny07]. Pour dépasser le critère de Rayleigh-Abbe, Syngé a l'idée d'éclairer l'échantillon avec une source fortement localisée. Il propose en effet d'utiliser une source fortement localisée obtenue en illuminant un trou sub-longueur d'onde percé dans un écran opaque, générant ainsi une source quasi ponctuelle d'ondes radiatives et évanescentes. Plaçant l'échantillon dans le champ proche de la source, on peut alors enregistrer en champ lointain le signal provenant de l'interaction en champ proche de cette source avec l'échantillon. Dans cette configuration, le signal détecté résulte non seulement de l'interaction des ondes radiatives, mais également des ondes évanescentes, avec la surface de l'échantillon (Figure II-1). Dans ce cas, comme dans l'expérience de Newton, une partie des ondes évanescentes générées est transformée en ondes radiatives et va donc participer à la formation de l'image de la surface en champ lointain. En déplaçant progressivement la source sur l'échantillon et en enregistrant point par point le signal détecté, il est alors possible d'obtenir une image complète de l'échantillon avec un pouvoir de résolution supérieur à celui d'un microscope classique.



**Figure II-1: Principe de l'expérience de Syngé. On enregistre en champ lointain l'interaction de la surface de l'échantillon avec les différentes ondes générées par l'éclairage d'une ouverture sub-longueur d'onde.**

Différents types de microscopes en champ proche optique ont vu le jour depuis la proposition de E.H. Syngé. Comme la notion de champ proche est associée à la longueur d'onde observée, pour des raisons techniques évidentes les premiers microscopes n'ont pas été réalisés aux longueurs d'ondes optiques. E.A. Ash et G. Nichols [Ash72] réalisèrent les premières expériences dans le domaine des ondes centimétriques en 1972, suivis des travaux de Massey dans l'infra-rouge lointain [Massey84]. Dans le même temps D.W. Pohl et al présentent les premiers travaux réalisés à des longueurs d'ondes visibles [Pohl84],[Dürig86]. Plutôt qu'un large écran percé, difficilement manipulable, l'idée originale proposée par E. H. Syngé est concrétisée en balayant, dans le champ proche de l'échantillon, une source de très petite dimension par rapport à la longueur d'onde. C'est le principe de base des microscopes champ proche à sondes locales. Il s'agit de réaliser en champ proche une interaction fortement localisée de la sonde et de l'échantillon. Cela se traduit par le balayage de la sonde à une très faible distance de la surface, quelques nanomètres pour les longueurs d'ondes optiques. C'est cette contrainte qui est à la base des premières difficultés techniques rencontrées pour la réalisation de ce type de microscopes. Cependant, nous allons montrer qu'ils permettent bien d'obtenir un pouvoir de résolution dépassant le critère de Rayleigh-Abbe.

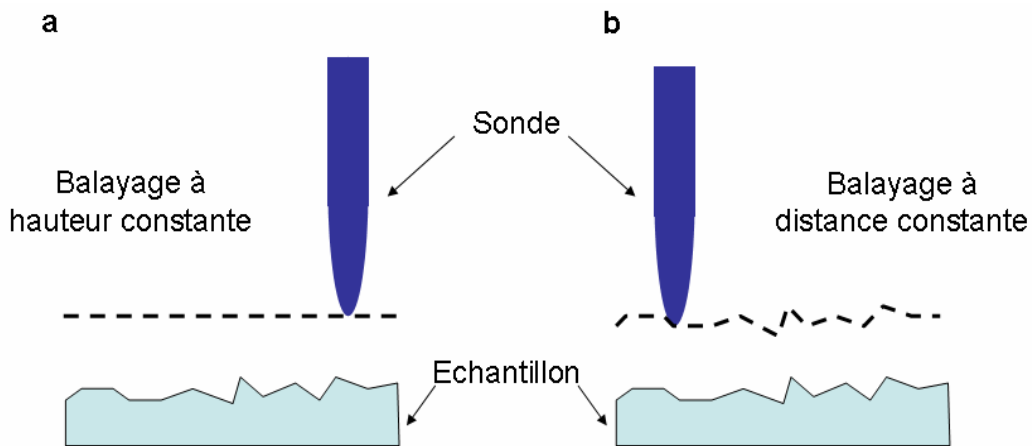
Ce gain en pouvoir de résolution se paye par la nécessité de mesurer point par point l'interaction de la sonde avec l'échantillon, pratique particulièrement coûteuse en temps. D'autres solutions permettront peut-être de contourner ce temps d'acquisition. Loin d'être exhaustif, je vais simplement évoquer deux voies de recherche actuellement explorées par différents groupes scientifiques. A. Sentenac et al ont montré que l'éclairage d'un échantillon par de multiples sources localisées (grâce à un réseau nano-structuré) permet d'obtenir une image complète avec un pouvoir de résolution supérieur au critère de Rayleigh-Abbe [Sentenac06]. On évite ainsi de balayer toute la surface de l'échantillon avec une sonde, mais il est nécessaire d'utiliser un traitement plus lourd des images recueillies, proche de celui effectué en tomographie. Cependant, bien que l'éclairage et la détection se fassent en champ

lointain, le principe de base reste tout de même l'interaction en champ proche de l'échantillon avec des sources fortement localisées. Une autre solution sera peut-être un jour l'utilisation de lentilles parfaites. Elles se proposent également de contourner le problème en utilisant la réfraction négative pour imager les ondes évanescentes [Pendry00],[Zhang08]. L'utilisation de sondes locales n'est donc assurément pas l'unique solution permettant de recueillir les informations contenues dans le champ proche de l'échantillon.

Cela étant dit, l'utilisation de sonde locale reste jusqu'à aujourd'hui la méthode la plus développée. Nous allons donc nous intéresser plus particulièrement à la mise en œuvre de la microscopie champ proche à sonde locale, base des travaux de cette thèse. Comme on l'a vu, un des points cruciaux est de permettre l'interaction de la sonde et de l'échantillon en champ proche, à une distance inférieure à la longueur de pénétration de l'onde concernée. Pour cela il est nécessaire de maintenir une très faible distance sonde-échantillon via l'utilisation d'un système d'asservissement. Ces systèmes se basent sur la modification de l'oscillation verticale ou latérale de la sonde dans le champ proche de l'échantillon. Dans le paragraphe suivant nous détaillerons l'intérêt de cet asservissement. Puis nous présenterons la méthode de régulation de la distance pointe-surface choisie et les différentes configurations optiques permises avec ce type d'asservissement.

### II.1.a. L'asservissement

Une méthode de balayage simple et rapide à mettre en œuvre est le balayage dit à hauteur constante (Figure II-2-a). Dans cette configuration, on réalise l'alignement entre le balayage de la sonde et la surface de l'échantillon et on diminue progressivement la distance entre la sonde et la surface de l'échantillon. Dans ce cas, le balayage peut s'effectuer sans faire osciller la sonde, ce qui présente un double avantage : on peut effectuer un balayage plus rapide de la surface et on ne moyenne pas les informations recueillies du fait de l'oscillation rapide de l'extrémité de la sonde par rapport au balayage de l'échantillon. Cependant, comme on l'a vu, il est nécessaire de s'approcher au plus près de l'échantillon, à quelques nanomètres, et de balayer sur des distances bien plus grandes (de l'ordre de la 10<sup>aine</sup> de  $\mu\text{m}$ ). Ce qui implique qu'un faible désalignement du balayage de la sonde vis-à-vis de la surface de l'échantillon peut provoquer un endommagement de la sonde. On réservera donc ce type de régulation pour réaliser des images de petites dimensions sur des échantillons à très faible rugosité. En effet, les échantillons peuvent présenter des rugosités (volontaires ou non) supérieures à la distance sonde-échantillon qui vont également poser problème. Il est donc intéressant de pouvoir réaliser le balayage de la sonde avec un système de régulation qui permette de maintenir une distance constante avec la surface de l'échantillon (Figure II-2-b).



**Figure II-2: Comparaison du balayage de la sonde à la surface de l'échantillon en mode hauteur constante (a) et distance constante (b).**

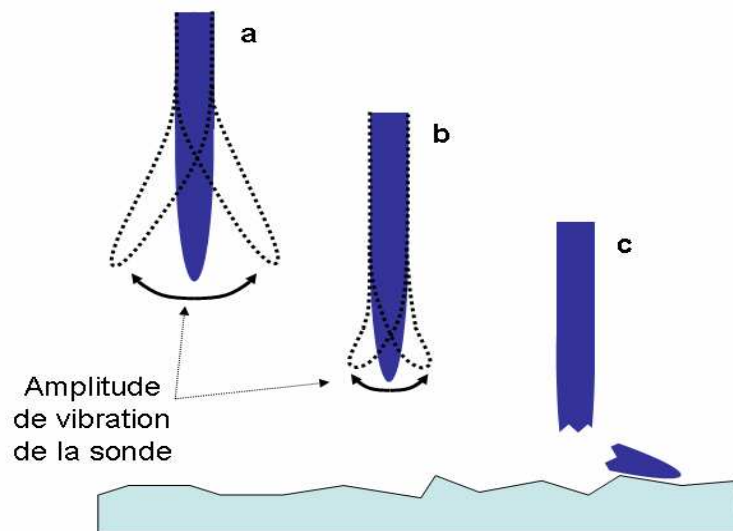
Le mode de balayage à distance constante de la surface de l'échantillon représenté sur la Figure II-2-b nécessite l'utilisation d'un système de contrôle de la distance sonde-surface de l'échantillon avec une boucle de contrôle ou 'feedback'. L'asservissement basé sur un système 'P.I.D.' (pour proportionnel, intégrale, différentiel) doit permettre une correction rapide de l'écart de la valeur mesurée avec la consigne. Ce type d'asservissement nécessite un ajustement de la vitesse du balayage de la sonde et des différentes valeurs correctives afin d'obtenir une réponse optimale en fonction de l'échantillon. Dans de bonnes conditions, la régulation permet de limiter les risques de contact de la sonde avec l'échantillon. De plus il est possible d'enregistrer simultanément les images topographique et optiques. Ce qui peut permettre un placement optimal de la sonde sur l'échantillon et faciliter l'interprétation des images optiques obtenues.

D'une façon générale, comme le champ associé aux ondes évanescentes varie rapidement en fonction de la distance avec l'échantillon, il est important pour l'interprétation des images enregistrées de connaître le plus précisément possible le lieu de déplacement de la sonde par rapport à l'échantillon lors du balayage. En effet, les variations de distance sonde-surface peuvent engendrer des modifications de l'intensité détectée. Le contrôle de la distance présente donc de nombreux avantages. Elle peut être obtenue via la mesure des forces de cisaillement ou 'shear-forces' [Betzig92]. Ce sont des forces d'interactions qui interviennent entre la sonde et la surface à très faible distance ( $\sim 20^{\text{aine}}$  nm). Dans le paragraphe suivant, nous allons présenter le mode de détection de ces forces de cisaillement.



## II.1.b. Détection des forces de cisaillement

Contrairement au mode de régulation de la microscopie à force atomique en mode tapping ou non-contact, les forces de cisaillement sont détectées en faisant vibrer la sonde parallèlement à la surface et non perpendiculairement. Loin de l'échantillon à étudier, on force la vibration de la sonde (Figure II-3-a). Ce système peut être considéré en première approximation comme une poutre vibrante. Si l'on approche la sonde de la surface de l'échantillon, elle entre en interaction avec la surface. Des forces supplémentaires agissent alors sur le système oscillant et l'amplitude de vibration de la sonde est modifiée (Figure II-3-b). C'est cette modification qui est mesurée. Après un calibrage pendant lequel la sonde est amenée jusqu'au contact de l'échantillon (Figure II-3-c), il est possible, avec une nouvelle sonde bien sûr, d'évaluer en fonction de la modification de l'amplitude de vibration, la distance sonde-surface. Par conséquent, pour asservir la sonde à une distance donnée de la surface, on lui impose la modification d'amplitude de vibration correspondante.



**Figure II-3: Principe de la régulation shear-force, lors de l'approche, l'amplitude de vibration de la sonde est modifiée par les forces supplémentaires mises en jeu.**

Les premières méthodes d'asservissement de la sonde en mode shear-force étaient réalisées par interférométrie [Toledo-Crow92] ou basées sur la diffraction d'un faisceau focalisé sur l'extrémité de la sonde [Grober94]. La première méthode non-optique est due à K. Karrai et al [Karrai95]. La sonde est fixée sur une des branches d'un diapason en quartz qui force la vibration de la sonde. Quand le système entre en interaction avec la surface, les forces de cisaillement modifient la résonance mécanique du système ce qui induit une modification des propriétés du quartz, entraînant ainsi un signal proportionnel aux forces de cisaillement.

## II.2. Description du SNOM utilisé lors de cette thèse

### II.2.a. Description du fonctionnement

Le SNOM utilisé lors de cette thèse a été réalisé par L. Berguiga. Le lecteur intéressé trouvera une description très complète du dispositif expérimental dans son manuscrit [Berguiga01]. Nous ne donnerons ici qu'une description générale du microscope, dont le fonctionnement est représenté schématiquement sur la Figure II-4.

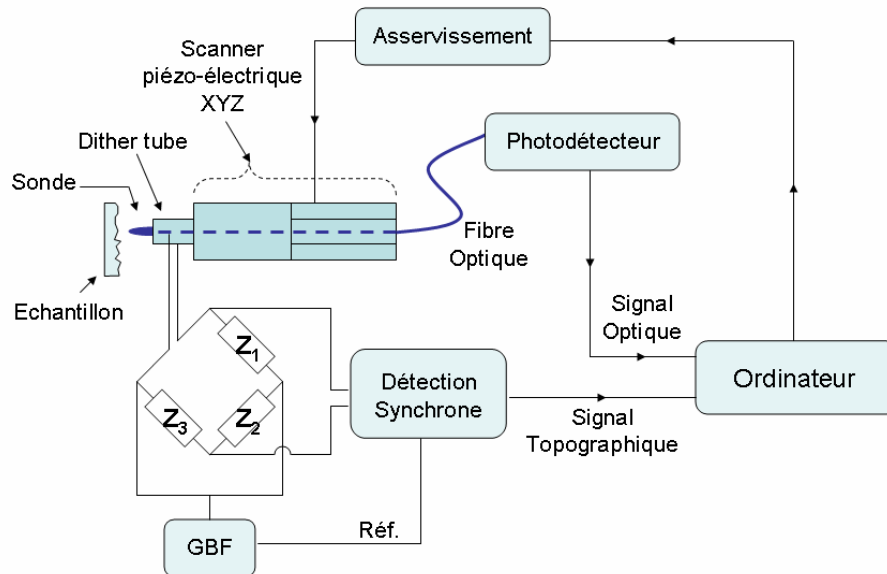


Figure II-4: Représentation schématique du microscope en champ proche utilisé lors de cette thèse.

La méthode de détection des forces de cisaillement utilisée est une méthode non-optique, hybride des approches proposées par J.W.P. Hsu et al [Hsu95] et J. Barenz et al [Barenz96]. La sonde est fixée à l'aide d'une paraffine dans un petit tube piézo-électrique, le 'dither tube', qui va permettre d'exciter la vibration de la sonde. En fonction de la longueur, de la rigidité et de la forme de la sonde, il existe un certain nombre de résonances pour différentes fréquences d'excitation. Le dither tube est relié à un pont de Wheatstone dont il constitue une des quatre branches. Pour une fréquence choisie, imposée par le générateur de fréquence (GBF), le pont est mis à l'équilibre lorsque la sonde est éloignée de la surface. Lors de l'approche, quand les forces de cisaillement modifient la résonance du système, cette modification déséquilibre le pont de Wheatstone. Le déséquilibre engendré dépend de la distance sonde-surface de l'échantillon. On impose alors via l'électronique de pilotage la valeur de déséquilibre souhaité qui servira de consigne à la boucle d'asservissement. La sonde constituée d'une fibre optique amincie balaye la surface de l'échantillon dans les trois directions de l'espace grâce à un ensemble de deux tubes céramiques piézo-électrique, 'le scanner piézo-électrique'. L'autre extrémité de la fibre est reliée à un photodétecteur. Pour finir, un ordinateur permet l'enregistrement simultané des signaux topographiques et optiques.

## II.2.b. Les sondes

L'extrémité de la sonde joue bien sûr un rôle crucial en microscopie champ proche à sonde locale. Il existe de nombreux types de sondes utilisables avec notre dispositif expérimental, fonctionnalisées ou non, avec ou sans ouverture, métallisées ou non... Les sondes utilisées au laboratoire sont obtenues à partir de fibres optiques monomodes amincies. Ce sont donc des sondes à ouvertures qui sont non-fonctionnalisées et non-métallisées. Elles sont fabriquées avec le plus grand soin par l'ingénieur chimiste du groupe C. Dumas, selon deux modes opératoires différents : on parle de sondes attaquées ou étirées.

La fabrication des sondes attaquées est réalisée par voie chimique selon la méthode proposée par R. Stöckle [Stöckle99]. L'extrémité clivée de la fibre est trempée dans un bain d'acide fluorhydrique sans retirer la gaine polymère. L'attaque prend plusieurs heures et est suivie d'une délicate opération de dégainage et d'un nettoyage pour éliminer les restes de réactifs. En contrôlant la durée d'attaque et la concentration du bain d'acide il est possible d'obtenir des 'apex', extrémité amincie de la sonde, de faible dimension ( $\sim 50\text{nm}$ ) et de différentes formes (angle d'ouverture plus ou moins aigus, de  $4/5^\circ$  à  $\sim 15^\circ$ ). Cependant, les sondes sont fragilisées par l'attaque et la surface de la zone d'attaque peut parfois être facettée.

L'autre méthode de fabrication est réalisée par étirage à chaud avec une étireuse laser. L'amincissement est réalisé en chauffant la fibre dégainée avec un laser  $\text{CO}_2$  pendant que deux bras mécaniques étirent la zone en question. On obtient ainsi deux sondes jumelles dont l'amincissement est réalisé en conservant le rapport cœur/gaine, contrairement aux fibres attaquées chimiquement. De plus, la surface de la sonde est plus lisse et les apex réalisés sont particulièrement petits ( $\sim 20\text{nm}$ ). Cette méthode de fabrication présente donc de nombreux avantages et le protocole est particulièrement reproductible.

Nous allons maintenant présenter et comparer les différentes configurations optiques rencontrées en microscopie champ proche optique à sonde locale.

## II.3. Les différentes configurations optiques

On recense classiquement trois modes opératoires différents. Nous allons commencer par détailler la configuration qui est l'héritière directe de la proposition de E.H. Synge, le mode dit en 'illumination', puis nous aborderons l'autre configuration dans laquelle la sonde peut guider la lumière, le mode 'collection'. Nous verrons ensuite le mode dit 'sans ouverture' ou 'apertureless' qui utilise des sondes opaques. Enfin, ce paragraphe se terminera en présentant un quatrième mode opératoire que je qualifierais de mode 'perturbation'.

### II.3.a. Mode illumination

La microscopie en mode illumination tient son nom du fait que la sonde est la source qui éclaire localement la surface de l'échantillon (Figure II-5). Dans ce cas on utilise une fibre optique dont l'extrémité a été amincie. La pointe est métallisée et l'apex est percé par un trou sub-longueur d'onde qui constitue la source d'ondes évanescentes. Ce mode de fonctionnement est directement inspiré de l'idée de E.H. Synge. La pointe balaye la surface de l'échantillon. L'interaction de la source localisée au bout de la sonde avec la surface génère des modifications dans le champ diffracté observé en champ lointain. La mesure peut s'effectuer derrière l'échantillon (si il est transparent) ou bien à l'avant.

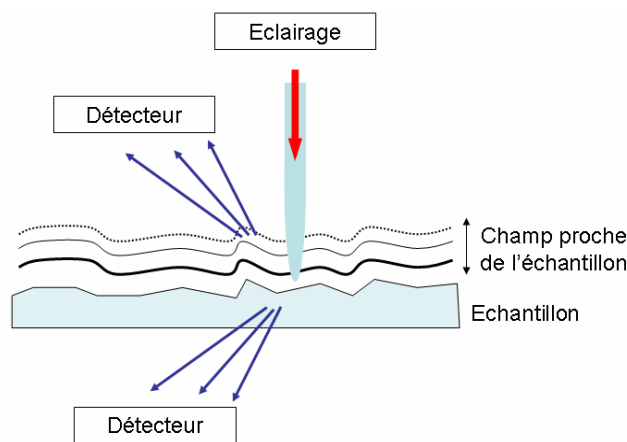


Figure II-5: Schéma de fonctionnement d'un SNOM en mode illumination.

### II.3.b. Mode collection

Une alternative possible à l'illumination locale est la détection locale. Si l'on considère le théorème de réciprocité, la possibilité d'invertir source d'éclairage et détecteur paraît évidente [Greffet97],[Méndez97]. Dans cette configuration, les ondes évanescentes sont créées à la surface de l'échantillon et diffractées par la sonde. En mode collection celle-ci permet de collecter une partie du champ diffracté pour l'amener au photodétecteur (Figure II-6). Si les sondes utilisées en mode illumination peuvent être utilisées en modes collection, l'inverse

n'est pas toujours vrai. En effet, en mode collection la sonde n'est pas nécessairement métallisée. De plus, il existe un mode d'asservissement particulier réalisable dans cette configuration si l'échantillon est éclairé en réflexion totale interne, la sonde est alors plongée dans un champ quasiment exclusivement composé d'ondes évanescentes. Il est dans ce cas possible d'asservir l'extrémité de la sonde sur une iso-intensité de champ. Ce mode de fonctionnement porte le nom de Photon Scanning Tunneling Microscope (PSTM) [Salomon91] faisant ainsi référence au fonctionnement des microscopes à effet tunnel électronique (STM).

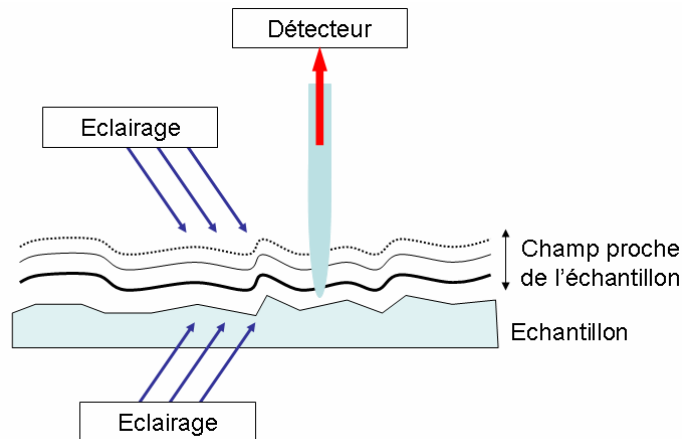


Figure II-6: Schéma de fonctionnement d'un SNOM en mode collection.

### II.3.c. Mode apertureless

Le mode apertureless est mis en œuvre dans le cas où la sonde ne peut ni éclairer ni collecter (Figure II-7). L'avantage de cette technique est de pouvoir profiter de l'excellente qualité des sondes utilisées en AFM. L'illumination et la collection se font en champ lointain. La sonde opaque permet la transformation en champ radiatif d'une partie du champ évanescent créé à la surface de l'échantillon.

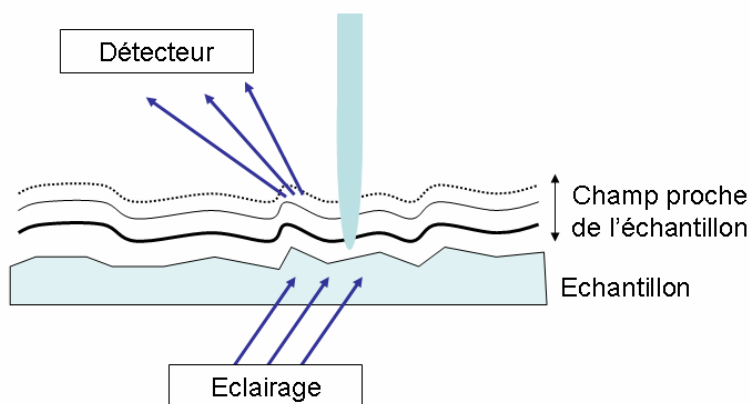


Figure II-7: Schéma de fonctionnement d'un SNOM en mode apertureless.

### II.3.d. Mode perturbation

Cette configuration expérimentale peut a priori être mise en place en parallèle de chacun des modes précédents et se différencie par la nature de la mesure. En effet, dans chacune des configurations précédentes, la présence de la sonde n'implique qu'une perturbation minimale de la structure du champ électromagnétique. On effectue donc une mesure de la structure du champ proche (faiblement perturbé) qui permet de connaître la structure du champ électromagnétique associé à l'échantillon via la diffraction due à l'interaction sonde-échantillon. On suppose dans la majorité des cas que la présence de la sonde n'a pas d'influence sur la variable mesurée, ou que la perturbation introduite est très faible et qu'elle peut donc être négligée. Dans cette 4<sup>ème</sup> configuration le but n'est pas de mesurer le champ dans lequel est plongée la sonde mais la perturbation d'une ou plusieurs des caractéristiques de la structure étudiée. Il est donc nécessaire que la perturbation induite par la sonde soit non-négligeable et qu'elle puisse être mesurée.

Il est bien sûr communément admis que toute mesure perturbe le système à l'étude. Au cours de cette thèse nous avons pu observer la perturbation par la sonde de la résonance d'une nano-cavité à cristal photonique. Il paraît donc important de préciser que dans le cadre de la microscopie optique de champ proche, A.F. Koenderink et al ont été les premiers à prédire la modification de la résonance d'une cavité à cristal photonique par la proximité d'une sonde champ proche [Koenderink05]. Dans cette configuration, la présence de la sonde dans le champ proche de la cavité implique une modification des propriétés de résonance de la cavité (longueur d'onde de résonance et finesse de la résonance). Ces modifications peuvent être mesurées en transmission en parallèle du balayage de la sonde comme l'ont montré expérimentalement Lalouat et al [Lalouat07]. Ces auteurs ont en effet réalisé la cartographie de la modification de la résonance d'une nano-cavité en fonction de la position de la sonde. L'image obtenue a pu être reliée au carré du champ électrique généré par la structure, mais elle n'est pas obtenue par la mesure du champ diffracté par la sonde. C'est bien la modification de la longueur d'onde de résonance de la cavité par la sonde qui est à l'origine de l'image ainsi formée. Avec la même méthode, Burresi et al ont récemment pu montrer que la cartographie du champ magnétique était également possible [Burresi09a&b].

Nous sommes arrivés au terme de l'introduction de ce manuscrit. Nous allons conclure avant de présenter les différents travaux expérimentaux réalisés lors de cette thèse.

## **Conclusion de la 1<sup>ère</sup> partie**

Après avoir tenté de replacer mon travail dans le cadre particulièrement général des sciences, je me suis attaché à présenter l'outil principal utilisé lors de cette thèse : la microscopie optique de champ proche à sonde locale. La comparaison avec la microscopie champ lointain classique a permis de montrer l'intérêt de ce type de microscopie. Finalement ; j'ai donné une description précise du microscope utilisé et des différentes configurations optiques possibles.

Précisons encore, avant de clore définitivement cette première partie, que la microscopie champ proche optique à sonde locale est un outil qui s'avère particulièrement efficace pour étudier les structures de champs électromagnétiques confinés et/ou localisés. Elle est donc un outil très apprécié pour l'étude des ondes de surfaces telles que les plasmons, ou l'étude des composants pour l'optique intégrée. Il est cependant important de signaler que les images, dont la réalisation nécessite de prendre de nombreuses précautions doivent être analysées avec rigueur. En effet, au-delà des questions récurrentes sur l'influence de la sonde (forme, sélectivité des composantes du champ...) le post-traitement des images, parfois très lourd, est pourtant souvent passé sous silence. Dans ce manuscrit, lorsqu'une image aura bénéficié d'un post-traitement, celui-ci sera systématiquement précisé.







## 2<sup>ème</sup> Partie :

# Etude de la perturbation induite par une sonde champ proche sur la stabilité d'une nano-cavité

*Everything should be made as simple as possible, but no simpler.*

Attribuée à Albert Einstein (1879-1955)

## Introduction de la 2<sup>ème</sup> partie

Cette seconde partie démarre avec un vieux rêve, 'piéger la lumière'. Qu'y a-t-il de mieux pour étudier un objet, que de pouvoir l'immobiliser pour l'observer sous toutes les coutures. Mais attraper un ou plusieurs photons n'est pas chose facile. En effet, jusqu'au jour d'aujourd'hui, il semble que ralentir des photons revient à les faire disparaître [Soljagic04],[Engelen08]. Ils sont alors inmanquablement absorbés par la matière. A défaut, nous autres scientifiques, tentons de les conserver le plus longtemps possible dans un volume le plus petit possible. Dans ce but, il est possible d'utiliser des cavités optiques, qui permettent le 'stockage' temporaire des photons. La cavité idéale ne permet d'ailleurs pas d'isoler complètement les photons, sinon comment les étudier... Il s'agit donc ici d'obtenir un savant mélange de confinement et de pertes. Les cavités sont ainsi caractérisées par deux données importantes, le facteur de qualité et le volume modal de la cavité. Le facteur de qualité  $Q$  rend compte de la finesse de la cavité, i.e. sa sélectivité en longueur d'onde, et de la capacité de celle-ci à stocker les photons. Le volume modal  $V$ , représente lui le volume utilisé

pour stocker ces photons. Pour les différentes cavités, on définit ainsi le rapport  $Q/V$  comme le facteur de mérite à optimiser.

Pour limiter l'étalement spatial des photons à étudier, on va littéralement les faire tourner en rond, dans des cavités à géométrie circulaire ou bien leur faire faire des allers-retours, dans des cavités à géométrie linéaire. Si les premières cavités ont des records théoriques en terme de facteur de qualité, les secondes permettent d'obtenir des volumes modaux beaucoup plus faibles [Vahala03] et en conséquence, des rapports  $Q/V$  compétitifs. De plus, de part leur géométrie plane et leur faible encombrement, elles présentent de nombreux avantages pour l'intégration dans des systèmes optiques. Plus fondamentalement, on cherche dans le principe à isoler les modes électromagnétiques au sein de la cavité du continuum des modes à l'extérieur de la cavité. On se base pour cela sur le phénomène de réflexion totale interne (évoqué dans la partie I.2.c) ou/et sur l'utilisation de cristaux photoniques, dont l'exemple le plus connu est probablement le miroir de Bragg. La réalisation de cristaux photoniques dans des couches guidantes a déjà permis de nombreuses réalisations : pour le guidage [Joannopoulos95], l'émission [Yokoyama96], les expériences d'électrodynamique quantique [Yoshie04],[Hennesy07], le ralentissement de la lumière [Tanabe07]...

Dans le cas d'observation de nano-cavités, l'étude de l'interaction entre les photons et la matière est rapidement nécessaire. En effet, à résonance, l'augmentation du facteur  $Q/V$  a pour influence d'augmenter très fortement la quantité de photons par unité de volume de matière, les effets d'interactions sont donc tout naturellement favorisés. L'interaction lumière-matière se caractérise alors par le déclenchement d'effets non-linéaires, qui sont à la base de l'étude présentée ici.

Cette 2<sup>de</sup> partie est donc dédiée à l'étude de l'interaction d'une sonde champ proche avec une nano-cavité en régime non-linéaire. Pour la mener à bien, nous avons confronté nos mesures à un modèle analytique, modèle qui sera systématiquement discuté à chacune des étapes de cette étude. Il nous permettra d'obtenir de nombreuses informations sur le fonctionnement des cavités aux 3 principales étapes de cette étude. Dans un premier temps, nous présenterons le design des cavités et leurs caractéristiques de fonctionnement lorsque la puissance injectée est faible, i.e. en régime linéaire. L'intensité transmise est dans cette configuration directement proportionnelle à l'intensité incidente, via une fonction que nous définirons. Nous étudierons ensuite le comportement de ces mêmes cavités pour des intensités d'injections plus importantes. La transmission n'étant plus linéaire, nous modifierons notre modèle en conséquence. Dans un troisième temps, nous présenterons pour différentes longueurs d'onde l'effet de la sonde sur le régime de fonctionnement des nano-cavités. Nous synthétiserons finalement les différentes mesures de cette étude afin de comparer au mieux le modèle théorique aux mesures expérimentales.

## III. Nano-cavités en régime linéaire

### III.1. Nano-cavité Fabry-Perot

#### III.1.a. L'interféromètre Fabry-Perot

Avant de décrire les cavités étudiées, nous allons très succinctement décrire le fonctionnement d'une cavité Fabry-Perot. Ce type de cavité se base sur le principe de l'interféromètre mis au point par Charles Fabry et Alfred Perot en 1897 [Mulligan98]. Cet interféromètre relativement simple à mettre en œuvre est réalisé en alignant deux miroirs partiellement réfléchissant (90% à l'époque) l'un en face de l'autre, définissant ainsi une cavité. Statistiquement, les photons qui entrent dans la cavité font plusieurs allers-retours dans la cavité avant d'en ressortir. On réalise ainsi un stockage temporaire des photons. On qualifie donc de micro- ou nano-cavité Fabry-Perot (FP), les cavités définies par deux miroirs alignés l'un en face de l'autre et dont les dimensions de la cavité sont de l'ordre du micro- ou du nano-mètre.

#### III.1.b. Nano-cavité Fabry-Perot à cristal photonique intégrée

L'étude suivante est basée sur des échantillons qui ont été réalisés par Philippe Velha et David Peyrade au Laboratoire des Techniques de la Microélectronique, le LTM basé sur le site du CEA-Léti à Grenoble [Velha08]. Les designs proposés ont été optimisés sous la direction de Philippe Lalanne au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique [Sauvan05a&b]. Les cavités sont intégrées dans des guides silicium ( $n \sim 3,45$ ). Les guides sont transparents aux longueurs d'ondes considérées (1,5-1,6 $\mu\text{m}$ ), et sont déposés sur un substrat en silice ( $n \sim 1,46$ ). Cette forte différence d'indice permet un bon confinement optique du mode guidé. Les dimensions des guides sont les suivantes, 340nm de haut pour 500nm de large. Les guides sont calculés pour être monomodes TE (champ électrique parallèle au plan de l'échantillon) à 1,55 $\mu\text{m}$ . Au centre des guides sont gravés par 'reactive ion etching' deux miroirs de Bragg photoniques. La modulation d'indice nécessaire au miroir de Bragg est réalisée via les trous d'air ( $n \sim 1 < 3,45$ ) gravés dans le guide (Figure III-1). Une description plus complète de la fabrication de ces cavités est donnée dans [Velha06].

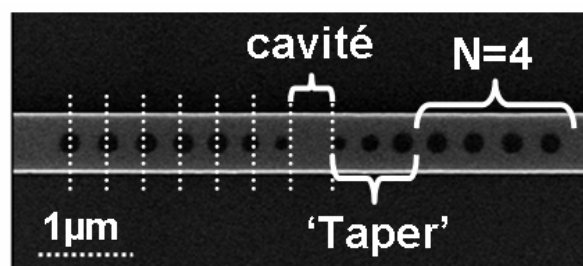


Figure III-1: Image MEB d'une nano-cavité Fabry-Perot à cristal photonique intégrée dans un guide silicium

Les miroirs qui composent les cavités sont en fait réalisés à partir de l'association du miroir de Bragg et d'un 'taper'. Le nombre de trous du miroir peut varier de 3 à 6 sur notre échantillon ( $N=4$  sur la Figure III-1). La dimension des trous et la période qui les séparent sont uniformes. L'autre partie, appelée 'taper', est composée de 3 trous. Ces trous présentent une modification graduelle de leur taille et de la distance qui les sépare. Ces modifications sont réalisées pour permettre une meilleure adaptation entre le mode de cavité et le mode de Bloch du miroir, minimisant ainsi les pertes. En mettant deux miroirs l'un en face de l'autre, on réalise des cavités de type Fabry-Perot (FP) [Cluzel05] dont le volume modal peut être très proche de la limite théorique de  $(\frac{\lambda}{2n})^3$  et dont les facteurs de qualité maximaux sont théoriquement limités à  $10^5$  [Velha07]. Par la suite, le nom des cavités indique le nombre de trous dont est constitué le miroir sans prendre en compte le taper. 'cavité 5' indique par exemple que les miroirs de la cavité FP sont composés de 8 trous chacun (5 pour le miroir et 3 pour le taper). Les dimensions de ces cavités sont calculées pour obtenir un mode de défaut dans la bande photonique interdite des miroirs. A la résonance, aux environs de  $1.55\mu\text{m}$ , la transmission de la cavité présente un maximum centré dans la bande de non-transmission dans le gap. La sélectivité en longueur d'onde, i.e. la largeur à mi-hauteur du pic de résonance, est variable en fonction de la qualité des miroirs.

### III.1.c. Mesures en transmission

Pour caractériser ces échantillons, nous disposons d'un banc de mesure en transmission (Figure III-2). Ce banc permet d'injecter dans les guides le faisceau d'un laser fibré, accordable entre 1500 et 1600 nm. La détection est réalisée avec une photodiode InGaAs refroidie avec un système Pelletier. L'injection et la collection dans le guide sont réalisées à l'aide d'objectifs permettant ainsi un couplage plus stable en comparaison du couplage réalisable avec des fibres. En effet, il semble que la flexibilité des fibres optiques amplifie les vibrations mécaniques entraînant des variations notables du couplage obtenu. Les polarisations des faisceaux à l'injection et à la collection sont contrôlées par des polariseurs. Cette précaution permet d'une part d'injecter préférentiellement dans le mode TE du guide et d'autre part de ne pas collecter un possible signal de dépolarisation dû à la propagation dans le guide.

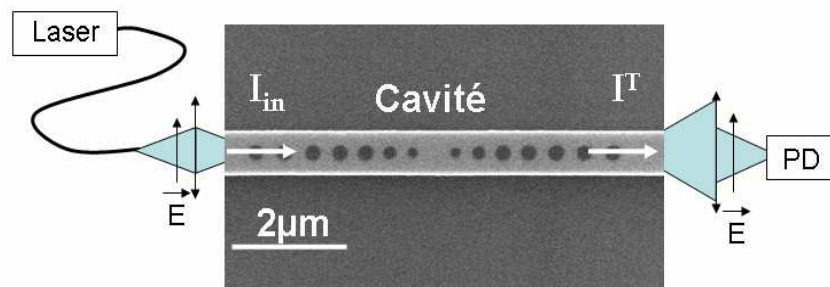
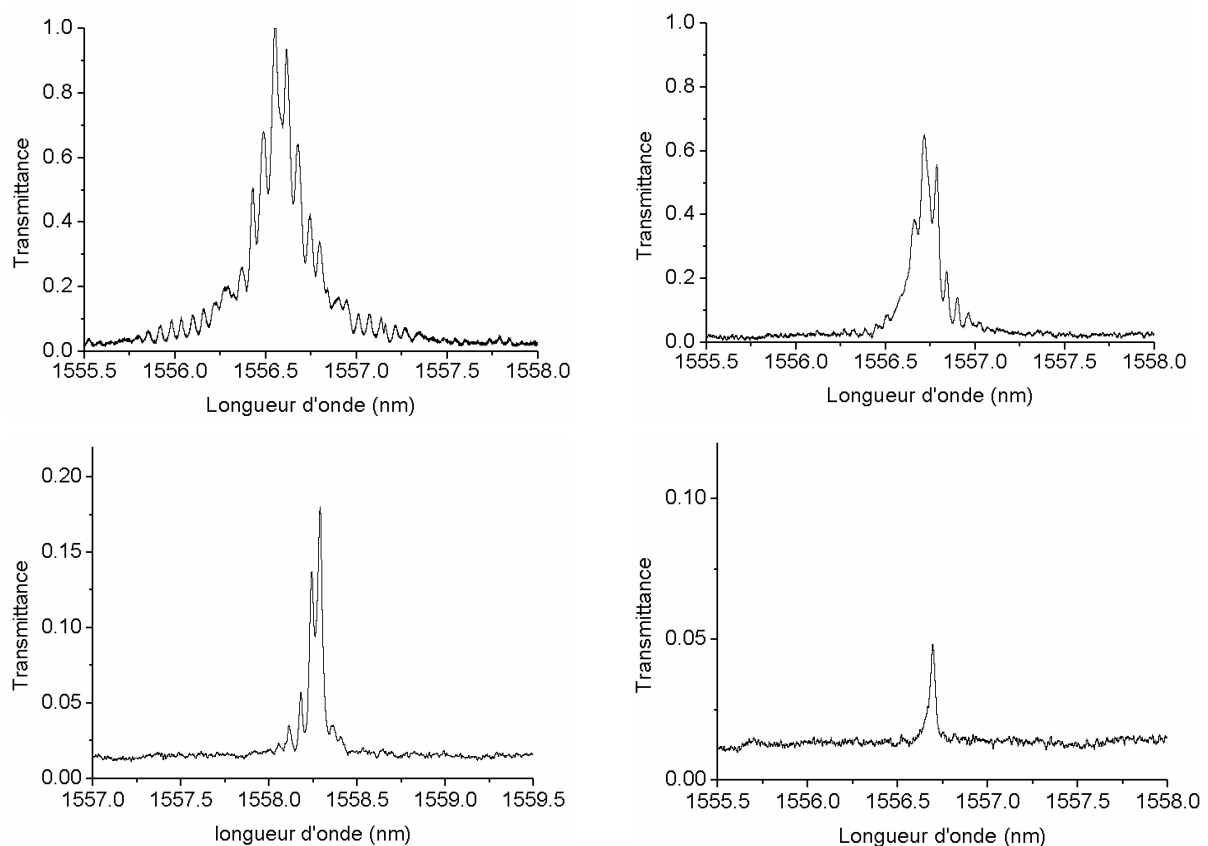


Figure III-2 : Schéma expérimental du banc de mesure en transmission

En sortie, l'objectif est choisi pour sa grande ouverture numérique ( $\sim 0,4$ ). Malgré cela, on estime que nos mesures sont effectuées à un facteur de collection près d'environ 1/7 de l'intensité réellement transmise. Ce facteur est calculé en faisant le rapport entre l'ouverture angulaire du guide et l'ouverture numérique de l'objectif, en considérant une répartition homogène de l'intensité lumineuse. En effet, le fort contraste d'indice entre le guide et l'air entraîne une grande ouverture angulaire du faisceau à la sortie du guide.

Grâce à ce banc nous avons démarré notre étude en mesurant les transmissions obtenues pour les différentes cavités (Figure III-3). Sur l'échantillon, un guide sans cavité est utilisé comme référence pour calibrer l'efficacité d'injection et de collection de notre montage. La normalisation des spectres enregistrés par rapport à la transmission maximum de cette référence permet de ne pas tenir compte du facteur de collection. Par contre, l'estimation de la puissance absolue injectée dans les cavités est de ce fait très imprécise. On estime que la puissance moyenne injectée est d'environ 125nW.



**Figure III-3: Transmittances mesurées pour les cavités 3, 4, 5 et 6.**

La Figure III-3 présente les transmissions normalisées enregistrées pour quatre cavités dont le nombre de trous composant le miroir varie de 3 à 6. Le niveau de transmission indique clairement que seule la cavité 3 atteint un taux de transmission maximale unitaire. Les autres cavités présentent des pertes non négligeables (jusqu'à 95% de la puissance injectée dans le cas de la cavité 6). Pour obtenir plus d'informations de ces spectres, nous avons réalisé une modélisation de la transmission de ces cavités avec un modèle Fabry-Perot (FP) basé sur la fonction dite d'Airy.

## III.2. Modèle Fabry-Perot

### III.2.a. Description du modèle Fabry-Perot associé

Plus généralement, lors de cette étude, nous avons en fait systématiquement confronté nos mesures aux résultats numériques attendus d'après un modèle FP. Ce modèle est basé sur la résolution des équations de Maxwell pour un système composé de deux interfaces planes parallèles, on parlera de film mince (Figure III-4).

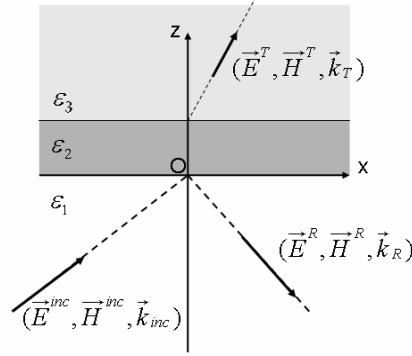


Figure III-4: Schéma de principe de l'interaction d'une onde EM avec un film mince

Dans cette structure, le calcul des différents champs, transmis et réfléchis peut se faire analytiquement [Yeh88]. On les exprime alors directement en fonction du champ incident grâce aux coefficients de Fresnel de transmission et de réflexion. Dans le cas de la cavité FP intégrée dans un guide, on considère des vecteurs d'onde réels selon l'axe Oz. L'utilisation d'un guide monomode permet en effet de limiter angulairement les vecteurs d'onde incidents. On note que les vecteurs d'onde dans les milieux 1 et 3 qui font références au guide sont égaux  $k_1 = k_3$ . On conserve par contre la possibilité de modifier le vecteur d'onde  $k_2$  dans la cavité définie dans notre modèle par les deux interfaces. Ces deux interfaces sont associées aux miroirs de la cavité. Dans ce cas, en considérant alors que ces deux miroirs ont les mêmes caractéristiques, on peut définir à partir de l'expression des champs incidents et transmis, la relation entre l'intensité transmise et l'intensité incidente telle que :

$$\checkmark \quad I^T = I^{inc} \frac{T^2}{(1-R)^2 + 4R \sin^2(k_2 d)} \quad \text{Eq. III-1}$$

On reconnaît ici la fonction dite d'Airy. Cette fonction permet de calculer l'intensité transmise par la cavité en fonction de l'intensité incidente, avec les coefficients de transmission et de réflexion en énergie, respectivement  $T$  et  $R$ . Cette fonction est maximale lorsque l'argument du sinus,  $\varphi = k_2 d$  vaut  $m\pi$  avec  $m$  un entier positif ou nul. On dit que  $m$  est l'ordre du mode résonant de la cavité. Il indique en fait le nombre de ventre de champ du mode dans la cavité. Dans ce cas, la transmission de la cavité est alors égale à  $\frac{T^2}{(1-R)^2}$  qui vaut 1 dans le cas d'une cavité idéale, sans perte (Figure III-5). Dans le cas le plus général, la transmission est maximale pour les longueurs d'ondes de résonance de la cavité en fonction

de  $m$ , telles que  $\lambda_r = \frac{2n_2d}{m}$ . On définit alors en fréquence l'intervalle spectral libre (ISL)

$$ISL = \frac{c}{2n_2d}, \text{ entre deux fréquences de résonance } \nu_m = \frac{c}{\lambda_r}.$$

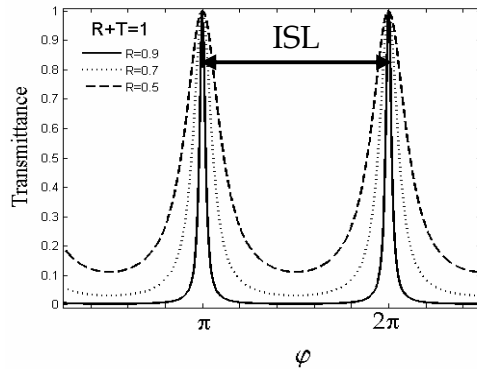


Figure III-5: Fonction d'Airy modélisant une cavité sans perte

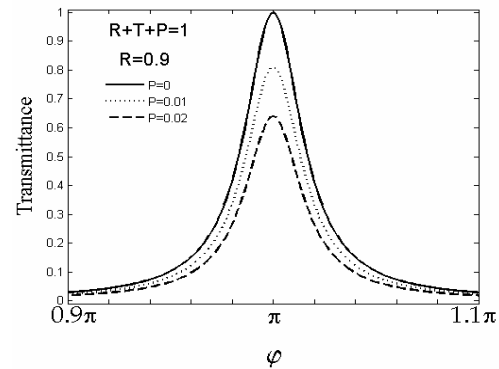


Figure III-6: Fonction d'Airy modélisant une cavité avec et sans perte

Enfin, on définit encore le facteur de qualité  $Q$  de la cavité tel que  $Q = \frac{\lambda_r}{\Delta\lambda}$  avec  $\Delta\lambda$  la largeur à mi-hauteur du pic de résonance. Ce facteur de qualité est représentatif de la sélectivité en longueur d'onde de la cavité. Il est avec le volume modal  $V$  un facteur de mérite important d'une cavité. En effet, le rapport  $\frac{Q}{V}$  est représentatif de l'exaltation du champ dans la cavité, on recherche donc généralement à maximiser ce rapport.

Par la suite, nous ne parlerons plus de fonction d'Airy mais de modèle Fabry-Perot pour évoquer la fonction reportée en équation Eq. III-1. L'argument du sinus sera lui la phase  $\varphi = k_2d$  du modèle considéré aux différentes étapes de cette étude.

### III.2.b. Caractéristiques des nano-cavités Fabry-Perot étudiées

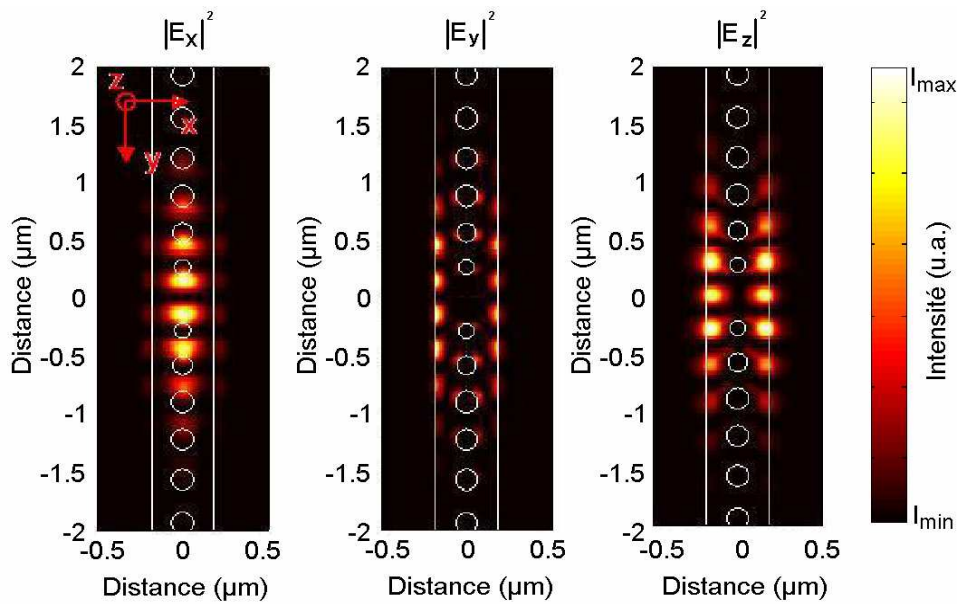
A l'aide de ce modèle, il est possible de connaître pour chacune des cavités les valeurs de réflectivité  $R$  et de transmission  $T$ , l'indice effectif du mode dans la cavité et le facteur de qualité à partir des mesures en transmission (Tableau III-1).

Cavité	$\lambda_r$ (nm)	Indice effectif	Réflectivité des miroirs	Transmission des miroirs	Q calculé
Cavité3	1556,666	2,83030	0,999	0,00095	6282
Cavité4	1556,71	2,83038	0,9993	0,0005	8975
Cavité5	1558,271	2,83322	0,99975	0,0001	25137
Cavité6	1556,835	2,83061	0,99982	0,000033	34914

Tableau III-1 : Récapitulatif de certaines caractéristiques des cavités Fabry-Perot étudiées en transmission pour une puissance injectée d'environ 125nW



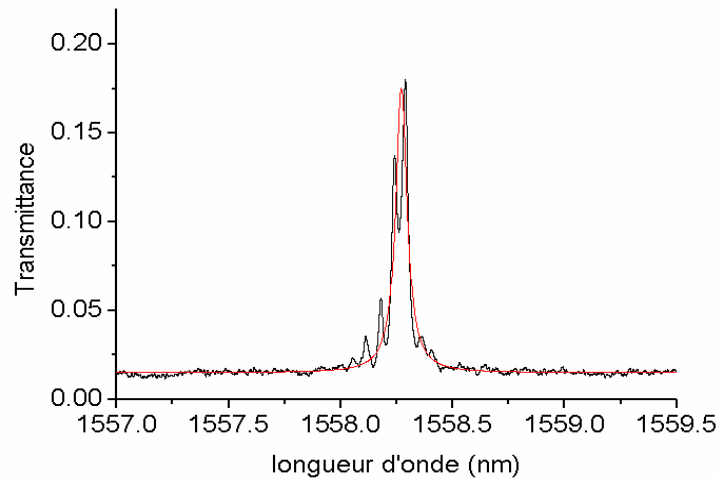
Le Tableau III-1 récapitule les différentes valeurs obtenues pour les cavités dont nous disposons. Pour obtenir ces valeurs, on décrit la phase 'linéaire' de notre modèle de la manière suivante  $\varphi_{lin} = \frac{2\pi n_{eff} L_c}{\lambda_r}$ . On fixe la longueur de la cavité à  $L_c = 550\text{nm}$  et c'est l'indice effectif  $n_{eff}$  qui prend en compte les déphasages introduits par les miroirs et les variations de dimensions dues à la fabrication. De plus, les modélisations du champ obtenues en FDTD [Velha08] et les images en champ proche effectuées préalablement [Lalouat08a] sur ces cavités montrent que l'on travaille sur la résonance d'ordre  $m = 2$  pour  $\lambda_r \sim 1.55\mu\text{m}$ . On confirme alors la faible dimension des cavités  $\sim 0.6 \left(\frac{\lambda}{n_{eff}}\right)^3$  [Velha07]. Les facteurs de qualité sont calculés d'après la formule suivante  $Q = \frac{\sqrt{R}}{(1-R)} [k_2 d - \lambda_r (\partial_\lambda \varphi)]$  découlant de l'expression donnée dans [Velha08], avec la variation du déphasage à la réflexion en fonction de la longueur d'onde  $\partial_\lambda \varphi = 0$  à la résonance. Pour les cavités étudiées, le facteur de qualité varie entre quelques milliers ( $Q \sim 6000$ ) et plusieurs dizaines de milliers ( $Q \sim 35000$ ).



**Figure III-7: Calcul à trois dimensions des distributions en intensité des différentes composantes du champ électrique du mode de cavité à 4nm de la surface. L'intensité maximale de  $E_x$  est 2,5 fois plus élevée que celle de  $E_y$  et  $E_z$ . [Lalouat08b]**

### III.2.c. Limites du modèle Fabry-Perot

La Figure III-8 présente la superposition de la transmission expérimentale mesurée et la transmission modélisée avec les paramètres obtenus et donnés dans le Tableau III-1 pour la cavité 5. Le bon accord (également confirmé pour toutes les autres cavités) entre la transmission mesurée et simulée nous permet de valider le modèle associé.

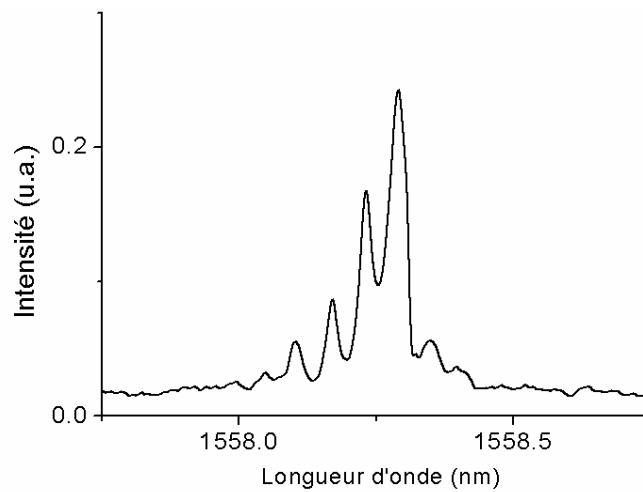


**Figure III-8: Transmission expérimentale et modélisée pour une cavité 5**

On remarque que contrairement au modèle FP, la transmission expérimentale est surmodulée par des oscillations dont l'ISL est beaucoup plus faible. Ces oscillations sont dues aux cavités 'parasites' de dimension  $D \gg d$  réalisées par les miroirs et la réflectivité des faces clivées des guides. Elles ne sont que peu problématiques dans le cas de cavité à moyen facteur de qualité, mais elles sont en revanche rédhibitoires pour effectuer une étude quantitative lorsque la largeur à mi-hauteur de la résonance de la cavité est inférieure à deux fois l'ISL des oscillations parasites (comme c'est le cas pour la cavité 6). Il est difficile alors de dissocier les caractéristiques de la résonance de la cavité FP étudiée des résonances parasites.

Il aurait été possible d'améliorer notre modèle par l'ajout d'une modulation sinusoïde de la puissance à haute fréquence spectrale ( $\nu \sim 16 \text{nm}^{-1}$ ). Mais cette fréquence n'est sûrement pas unique. En effet, l'ensemble {miroirs, faces clivées} peut engendrer plusieurs cavités de tailles différentes et donc surmoduler la transmission de résonances parasites dont les ISL sont différents. Nous avons donc fait le choix de ne pas ajouter de surmodulation afin de ne pas alourdir le modèle. Ce choix est directement justifiable par le fait que la surmodulation ne représente que quelques pourcents de la transmission maximale dans le cas des cavités 3 et 4. Cependant, dans le cas de la cavité 5 il représente jusqu'à 30% de la transmission maximale, et 100% dans le cas de la cavité 6. Par la suite, les mesures seront effectuées à des longueurs d'ondes fixes, ce qui implique que la surmodulation se résume dans cette configuration à multiplier le résultat obtenu par une constante fonction de la longueur d'onde. Cette modification sera prise en compte lors de l'analyse des données expérimentales, notamment lors de la comparaison entre les mesures et le modèle.

Lors de l'augmentation de la puissance injectée avec notre laser, nous avons pu observer une déformation du pic de résonance accompagné d'un décalage du maximum de transmission vers les hautes longueurs d'onde.



**Figure III-9: Transmission expérimentale présentant une légère dissymétrie**

Ces modifications ne sont pas prises en compte par notre modèle. En fait, si le modèle est bien adapté à l'étude des cavités en régime linéaire, i.e. pour de faibles puissances injectées, il ne permet pas de rendre compte de la déformation et du décalage en longueur d'onde du pic de résonance pour des intensités injectées plus élevées. Ces modifications du pic de résonance sont dues à des effets non-linéaires qui se produisent dans la cavité. On dit que la cavité entre dans un régime de fonctionnement non-linéaire. Nous allons maintenant étudier le comportement des cavités dans ce régime.

Dans les parties suivantes, nous ne développerons que les résultats obtenus sur la cavité 5. Cette cavité présente un bon facteur de qualité ( $Q \approx 25000$ ) ce qui est important pour notre étude, tout en permettant une étude quantitative des phénomènes observés (ce qui ne serait pas le cas avec la cavité 6). Les résultats concernant les autres cavités seront présentés plus succinctement en Annexe A.

## IV. Cavités en régime non-linéaire

Lorsqu'on observe le passage d'une onde électromagnétique dans un matériau, on constate qu'elle ne se propage pas de façon inerte. Sa propagation est au minimum modifiée par l'indice optique linéaire du matériau. Le champ électrique associé à cette onde provoque également un déplacement des charges dans le matériau. En régime linéaire, la réponse du matériau est directement proportionnelle à l'excitation provoquée par le champ incident. Pour un champ électromagnétique de faible amplitude, les propriétés optiques du matériau sont alors indépendantes de l'amplitude de ce champ. La structuration de l'indice optique linéaire sur le parcours de l'onde permet ainsi de contrôler sa propagation via l'utilisation de lentilles, de guides ou de cristaux photoniques par exemple. Cependant, si l'amplitude du champ devient trop importante, on observe alors des effets non-linéaires lors de la propagation de l'onde dans le matériau. En effet, les propriétés optiques du matériau deviennent dépendantes de l'amplitude du champ incident. Dans ce cas, du point de vue de l'onde au moins, une partie de l'amplitude du champ est alors 'perdue', entraînant des modifications des propriétés optiques du matériau. On parle d'effets dissipatifs. On recense de nombreux effets de différente nature dont nous ne ferons pas la liste ici [Shen84]. Non-contrôlés, ces effets peuvent avoir une influence néfaste sur la propagation du faisceau, et ils peuvent même engendrer la dégradation du matériau dans lequel l'onde se propage. Nous allons voir comment les effets non-linéaires peuvent également provoquer un régime de fonctionnement bi-stable des cavités. Cette bistabilité permet ainsi d'obtenir une modification brutale du taux de transmission de la cavité. Il est alors possible de réaliser le pendant optique du transistor bien connu en électronique. On parle alors de transistor optique [Perez04].

### IV.1.a. Effets non-linéaires dans le Silicium

L'indice optique d'un matériau évolue donc sous l'influence du champ électromagnétique qui le traverse, on parle aussi de l'effet Kerr. Cette modification d'indice peut se traduire en exprimant la valeur de l'indice optique d'un matériau sous la forme suivante  $n_{eff} = n_0 + \Delta n(I) = n_0 + \sum_{\alpha} n_{\alpha} I^{\alpha}$ , avec  $n_0$  l'indice linéaire du matériau et  $n_{\alpha}$  le coefficient d'indice non-linéaire associé à l'intensité  $I^{\alpha}$  dans le matériau. On dit alors que  $\alpha$  est l'ordre de la non-linéarité. Dans le silicium, matériau centro-symétrique, on peut s'attendre à observer majoritairement cet effet Kerr et les effets dus à l'absorption à deux photons comme le montrent différentes études réalisées sur le matériau massif [Dinu03],[Bristow07] ou dans des guides silicium [Lin07]. Ces différents effets ont des temps de relaxation  $\tau$  caractéristiques inférieurs à la  $\mu$ s. A notre échelle de temps, nous considérerons que ces effets sont instantanés ( $\tau \ll 1$ ms). Dans le silicium, sous l'impulsion d'un fort champ EM, on observe également des effets de diffusion des paires électrons-trous

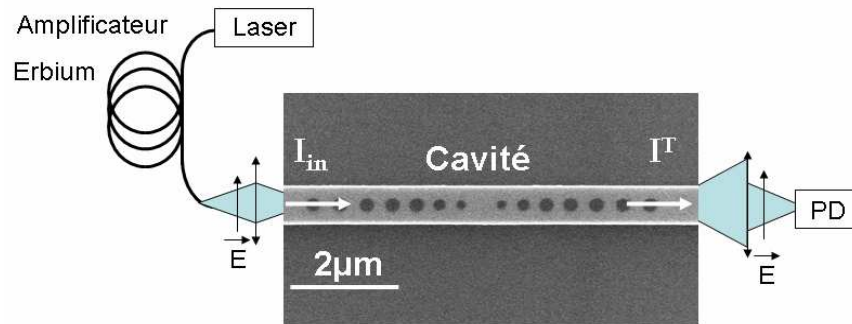
créés par l'absorption à deux photons, dont la recombinaison par thermalisation engendre une augmentation de l'indice du silicium. Dans ce matériau, ces différents effets ont fait l'objet d'études très détaillées et en particulier dans différentes cavités à cristaux photoniques [Barclay05],[Notomi05],[Uesugi06]. Ces expériences tirent profit du fort facteur de surtension du champ dans la cavité et des faibles volumes modaux des cavités à cristal photonique pour diminuer le seuil en puissance de l'apparition des effets non-linéaires comme le montrent différentes études théoriques [Soljagic02&04],[Bravo-Abad07]. Le seuil d'apparition des effets non-linéaires est en effet proportionnel au rapport  $\frac{V}{Q^2}$ . Dans notre cas, le fort rapport  $\frac{Q}{V}$  des cavités étudiées va donc également favoriser les effets non-linéaires. En confinant dans un faible volume un champ EM intense, il est ainsi possible d'observer ces effets pour des intensités injectées de l'ordre du  $\mu\text{W}$ . Pour des facteurs de qualité comparables à ceux présentés dans cette partie et des volumes modaux légèrement supérieurs, les seuils reportés dans la littérature varie de la dizaine de  $\mu\text{W}$  [Notomi05] à la centaine de  $\mu\text{W}$  [Barclay05]. Mais la comparaison des seuils de non-linéarité n'est pas directe, en effet les techniques d'injection varient suivant les différentes études présentées, et l'estimation de la puissance injectée dans la cavité n'est pas facile à déterminer avec précision.

Ces résultats ne sont pas observés pour les seules cavités à cristaux photoniques en silicium. Ils ont également été observés pour d'autres types de matériaux dans des cavités à cristaux photoniques [Weidner07],[Combrié08] et pour d'autres types de cavités [Almeida04a],[Vienne08].

Via la modification de l'indice, ces effets non-linéaires vont provoquer un décalage en longueur d'onde et une déformation du pic de résonance comme le montrent différentes études [Cowan03],[Notomi05],[Weidner07].

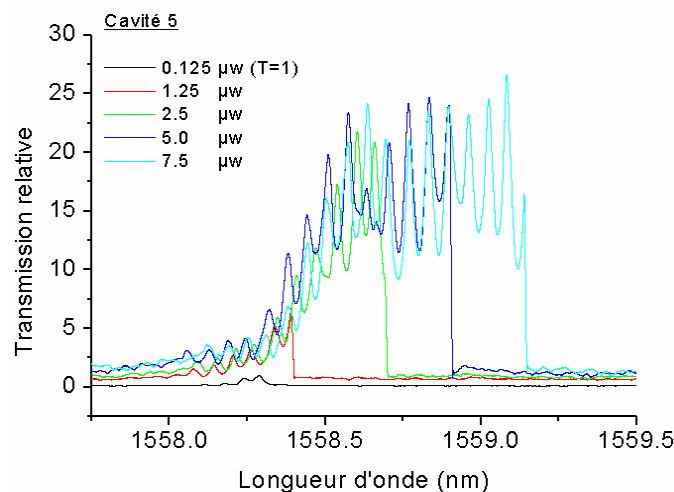
### IV.1.b. Mesures spectrales à forte puissance d'injection

La puissance disponible avec notre laser n'étant pas suffisante pour observer systématiquement les effets non-linéaires, nous avons eu recours à un amplificateur fibré (Figure IV-1). Basé sur une fibre dopée par des ions erbium, cet amplificateur est ajouté à la ligne d'injection. Le taux d'amplification est contrôlé par l'intensité électrique du pompage de la fibre dopée. Comme précédemment, nous avons étalonné la puissance injectée avec un guide sans cavité. Ce montage permet d'amplifier jusqu'à plus de 60 fois la puissance injectée en régime linéaire.



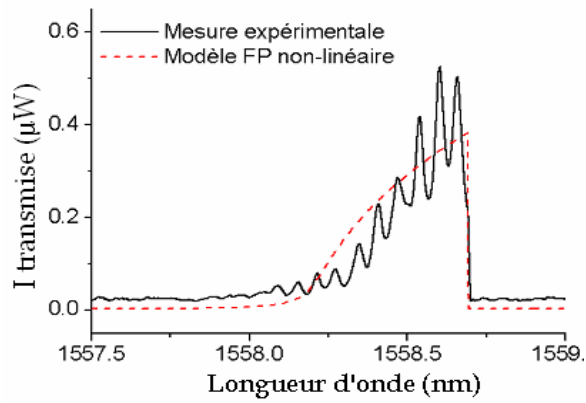
**Figure IV-1: Schéma expérimental de mesure en transmission des cavités en régime non-linéaire**

Nous avons ainsi pu enregistrer les spectres en transmission des cavités en régime non-linéaire en fonction de la puissance injectée. Ces spectres sont représentés pour la cavité 5 sur la Figure IV-2. A des fins de comparaison, les spectres sont normalisés par la valeur de la transmission maximale enregistrée en régime linéaire ( $I_{in}=0,125\mu\text{W}$ ).

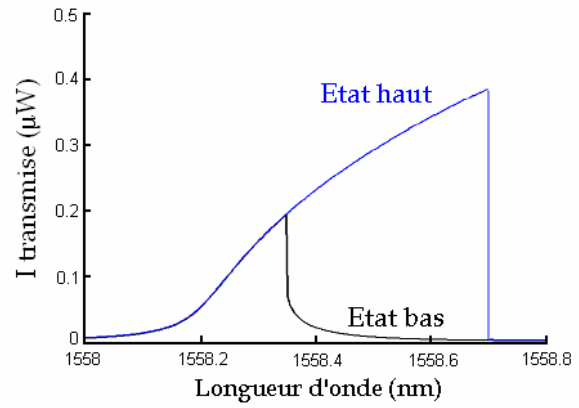


**Figure IV-2: Transmissions relatives de la cavité 5 en fonction de la puissance injectée**

Lorsqu'on augmente la puissance injectée, on remarque tout d'abord le décalage en longueur d'onde du maximum de transmission ainsi que l'augmentation de la transmission absolue de la cavité. Cette augmentation de la transmission n'est pas directement proportionnelle à l'augmentation de l'injection et on observe même au-delà de  $2,5\mu\text{W}$  une saturation de la valeur de la transmission maximum. Dans un deuxième temps, on remarque que la résonance n'a plus la forme d'un lorentzienne. En effet, l'intensité transmise augmente de façon dissymétrique. L'augmentation est beaucoup plus importante aux longueurs d'onde supérieures à la longueur d'onde de résonance de la cavité à faible puissance. On observe encore l'apparition d'une discontinuité vers les hautes longueurs d'onde. Cette discontinuité est une signature spectrale de la bistabilité générée par les effets non-linéaires. En fait, la forme dissymétrique de ces enregistrements est due à la faible vitesse de balayage en longueur d'onde ( $\partial_t \lambda = 0.1\text{nm/ms}$ ) comparée à la mise en place des effets non-linéaires. On pourrait parler d'artéfacts de mesure. Lors du balayage des basses vers les hautes longueurs d'onde, la transmission est nulle avant que la longueur d'onde injectée ne rentre en résonance avec la cavité. On parle d'état bas, la cavité est en régime de très faible transmission. Puis le balayage permet de mettre en résonance la longueur d'onde injectée et la cavité. A ce moment précis, via les effets non-linéaires, l'intensité injectée modifie l'indice du mode dans la cavité. La longueur d'onde de résonance de la cavité se décale vers les hautes longueurs d'onde de façon instantanée (en comparaison avec la vitesse du balayage). Le pas de balayage suivant améliore l'accord entre la longueur d'onde injectée et la longueur d'onde de résonance de la cavité, ce qui a pour effet d'augmenter l'intensité injectée dans la cavité. Cette augmentation entraîne également un décalage supplémentaire de la longueur d'onde de résonance de la cavité. Ce phénomène se répète en cascade pendant que le spectre enregistre la transmission de la cavité qui augmente et se décale progressivement. C'est cet effet qui est responsable de la large ouverture du pic de résonance vers les hautes longueurs d'onde. L'oscilloscope enregistre en fait tous les maxima successifs pour les différentes puissances injectées dans la cavité. Le décalage se prolonge tant que l'intensité injectée augmente. La cavité est en régime de forte transmission, on parle d'état haut. Quand le décalage de la résonance est arrivé à son maximum, le pas de balayage suivant désaccorde légèrement la longueur d'onde injectée avec la résonance de la cavité, ce qui a pour effet de diminuer l'intensité injectée, désaccordant plus encore les longueurs d'onde d'injection et de résonance. Ce phénomène se répète de façon instantanée (par rapport au balayage) et est à l'origine de la discontinuité enregistrée dans la transmission. La cavité repasse alors brusquement dans l'état bas (Figure IV-3 et Figure IV-4).



**Figure IV-3: Mesure et simulation de la transmission absolue de la cavité 5 en régime non-linéaire**



**Figure IV-4: Simulation de la bistabilité spectrale de la cavité 5 en régime non-linéaire**

Si il nous était possible d'effectuer des balayages des hautes vers les basses longueurs d'onde, au moment de la discontinuité, l'accord entre la longueur d'onde injectée et la résonance de la cavité ne serait pas réalisé puisque l'intensité injectée serait très faible voir nulle. La cavité resterait donc dans l'état bas jusqu'à l'entrée en résonance de la longueur d'onde injectée avec la cavité (longueur d'onde de résonance pour une faible puissance injectée). Le balayage ayant progressé on pourrait alors observer une bistabilité spectrale comme le montre la Figure IV-4 calculée à partir du modèle FP non-linéaire que nous allons détailler.



## IV.2. Modèle FP non-linéaire

### IV.2.a. Description du modèle FP non-linéaire

Pour rendre compte de la modification de l'indice du silicium dans la cavité en fonction de l'intensité injectée, nous avons modifié l'expression de la phase dans notre modèle FP. On écrit alors que  $\varphi = \varphi_{lin} + \varphi_{NL} = \frac{2\pi n_{eff} L_c}{\lambda} + \frac{2\pi \Delta n(I^{cav}) L_c}{\lambda}$ . D'après la résolution des équations de Maxwell pour le problème considéré, on sait que l'intensité dans la cavité est proportionnelle à l'intensité transmise  $I^{cav} \propto I^T$ . Dans le modèle FP non-linéaire associé, l'intensité transmise n'est donc plus uniquement fonction des caractéristiques de la cavité et de l'intensité incidente. Elle est également fonction de l'intensité dans la cavité, la fonction est dite 'implicite'. Par contre, on peut écrire que l'intensité incidente, elle, n'est fonction que de l'intensité transmise et des caractéristiques de la cavité. On va donc rechercher les solutions de la fonction suivante  $I^{in} = I^T \left[ \frac{(1-R)^2}{T^2} + \frac{4R \sin^2(\varphi_{lin} + \varphi_{NL})}{T^2} \right]$ . Cette dernière se représente schématiquement comme la somme d'une fonction linéaire et d'une fonction en  $I^T \sin^2(\varphi(I^T))$  dont l'évolution de la phase dépend de l'intensité (Figure IV-5).

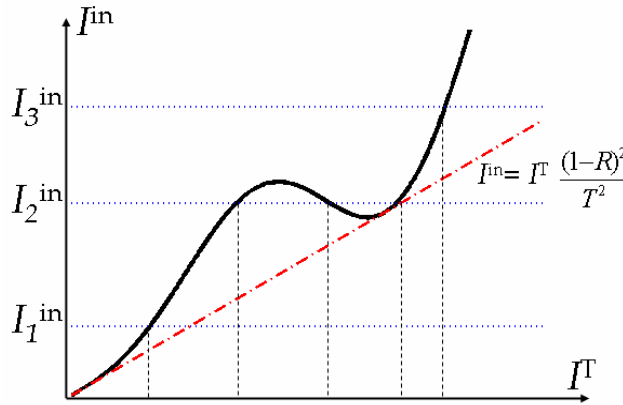
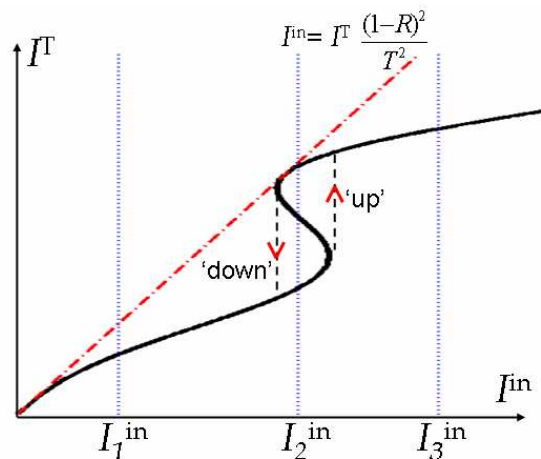


Figure IV-5: Représentation schématique de la fonction modélisant l'intensité injectée en fonction de l'intensité transmise

Pour modéliser notre problème, on recherche alors pour chaque valeur d'intensité injectée les valeurs d'intensités transmises [Gibbs85]. En fonction des différentes valeurs de l'intensité injectée, il peut y avoir : soit une unique valeur d'intensité transmise (cas  $I_1^{in}$  et  $I_3^{in}$ ), soit trois valeurs (cas  $I_2^{in}$ ) qui sont solutions du problème. Dans ce dernier cas, la valeur basse représente une solution et la valeur haute une autre, la transmission est 'bi'-stable. Il existe deux valeurs d'intensité transmise différentes pour une même intensité injectée dans la cavité. La valeur intermédiaire est un point de fonctionnement instable du système. En effet on voit sur la Figure IV-6 que pour respecter le fait que l'intensité injectée ne fasse

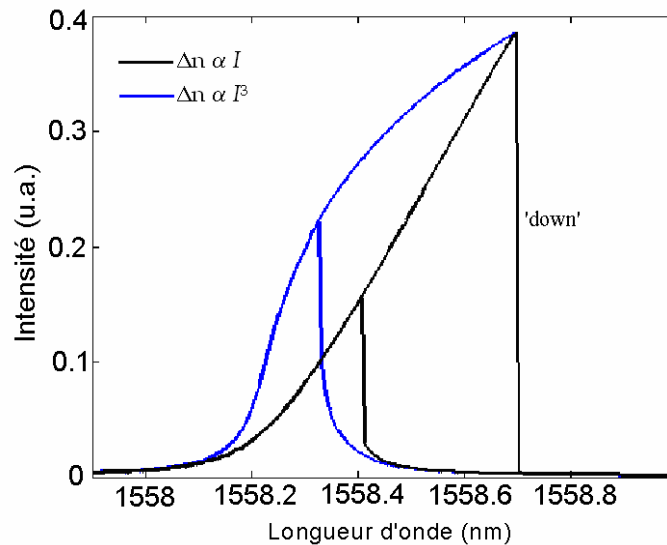
qu'augmenter, le système est contraint de passer de l'état bas à l'état haut de façon discontinue (discontinuité 'up'). Quand l'intensité injectée diminue il se passe un phénomène identique, le système réel est contraint de passer de façon discontinue de l'état haut à l'état bas (discontinuité 'down'). On enregistre alors un cycle d'hystérésis et les points de la courbe modélisant le comportement de la cavité à l'intérieur du cycle d'hystérésis sont des points de fonctionnement instables du système. On remarque pour finir que dans le cas du système réel, la valeur de l'intensité transmise 'choisie' dépend de l'état (haut ou bas) dans lequel se trouve la cavité à l'instant d'avant.



**Figure IV-6: Représentation schématique de la fonction modélisant l'intensité transmise en fonction de l'intensité incidente**

### IV.2.b. Analyse des mesures spectrales en régime non-linéaire

Lorsqu'on souhaite modéliser le comportement non-linéaire des différentes cavités, il est nécessaire de connaître les coefficients de chaque ordre non négligeable des non-linéarités mises en jeu. A ce stade, il est particulièrement difficile de connaître les différents coefficients non-linéaires mis en œuvre dans la modification de l'indice du silicium. Les oscillations parasites rendant difficile l'évaluation des différents paramètres. En effet, comme l'illustre la Figure IV-7, pour des lois d'évolution non-linéaires très différentes (variation linéaire ou cubique de l'indice), il est possible d'obtenir la même transmission maximale et la même valeur de longueur d'onde maximale de transmission. La modification des différents paramètres engendre uniquement une différence dans la rapidité d'évolution de l'intensité transmise.



**Figure IV-7: Modélisation de la transmission en fonction de différentes lois d'évolution de l'indice**

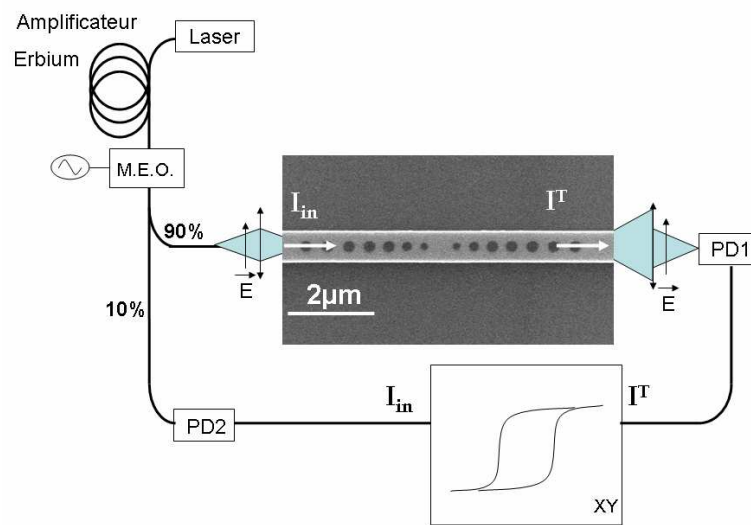
Il existe donc un certain nombre de paramètres qui peuvent être envisagés pour modéliser la transmission des cavités pour une même discontinuité 'down' (Figure IV-7). C'est pourquoi, la surmodulation de la transmission par les résonances parasites ainsi que les incertitudes de mesures rendent difficile la comparaison des résultats expérimentaux avec notre modèle.

Le balayage des basses vers les hautes longueurs d'onde aurait pu apporter des informations supplémentaires, mais n'aurait pas résolu le problème de la surmodulation. Nous avons donc décidé de modifier notre dispositif expérimental pour effectuer une étude plus précise du régime non-linéaire des cavités. Nous allons enregistrer les fonctions de transfert en intensité pour différentes longueurs d'onde d'injection. Pour une longueur d'onde fixée, on enregistre l'intensité transmise en faisant varier l'intensité injectée. Comme nous l'avons évoqué précédemment (paragraphe IV.2.a), ces courbes permettent également d'observer le comportement bistable des cavités (Figure IV-6).

### IV.3. Mesure des fonctions de transfert en intensité

#### IV.3.a. Description du dispositif expérimental

A la vue des nombreuses incertitudes et limitations de l'étude spectrale, nous nous sommes donc intéressés à l'étude de l'intensité transmise en fonction de l'intensité injectée pour différentes longueurs d'onde données. Pour enregistrer les fonctions de transfert en intensité, i.e. la transmission à longueur d'onde fixe pour un ou plusieurs cycles d'intensité injectée, il a fallu ajouter un modulateur dans la ligne d'injection. Nous avons également créé une ligne de référence à l'aide d'un coupleur fibré (90/10) (Figure IV-8). Dans cette nouvelle configuration, l'intensité maximale disponible en entrée de cavité est estimée à environ  $2,4\mu\text{W}$ .

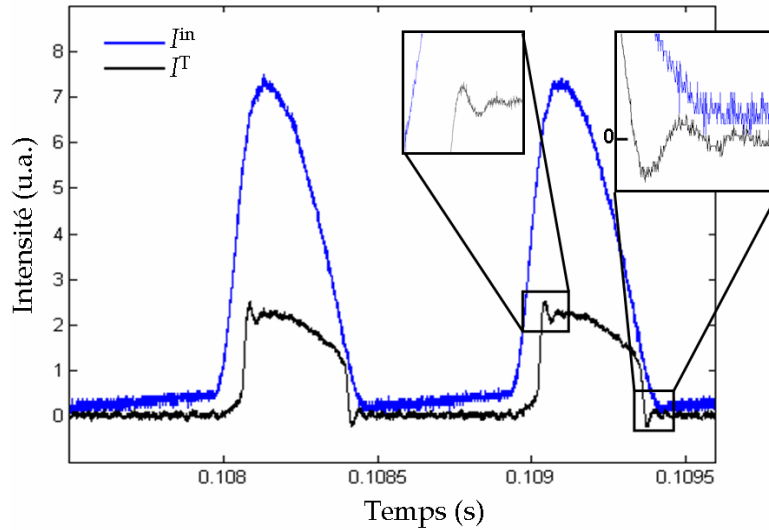


**Figure IV-8: Schéma du montage expérimental permettant l'enregistrement des fonctions de transfert en intensité des cavités**

Le modulateur est un modulateur électro-optique (MEO) qui permet une modulation rapide ( $> \text{kHz}$ ) du faisceau injecté entre 0 et  $2,4\mu\text{W}$ . La transmission résiduelle est en effet inférieure au niveau de bruit détecté dans la branche de référence et de transmission. La polarisation est contrôlée par des boucles de Lefebvre avant et après le MEO. Au nombre de trois, ces boucles sont réalisées par enroulement d'une fibre optique. Elles permettent alors de tourner la polarisation en utilisant la biréfringence induite par les contraintes de torsions imposées à la fibre. Cet assemblage permet un contrôle fibré de la polarisation avec des pertes minimales. On conserve tout de même les polariseurs à l'injection et à la collection.

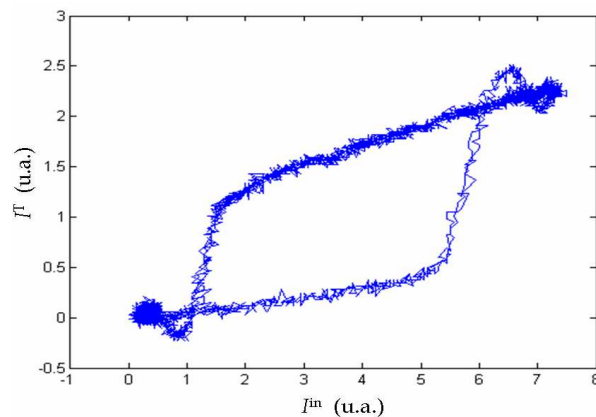
On enregistre ainsi les fonctions de transfert en intensité des cavités en fonction du detuning  $\delta$ , défini comme l'écart entre la longueur d'onde injectée et la longueur d'onde de résonance de la cavité à faible puissance  $\delta = \lambda_{in} - \lambda_r^0$ . Le réglage du générateur de fréquence (offset, amplitude et fréquence) permet la modulation du signal injecté. La fréquence de modulation est limitée par la bande passante de la chaîne de détection. En effet, l'amplitude

des signaux transmis, quelques centaines de nW seulement, limite la fréquence de modulation au kHz. Au-delà, on remarque des artéfacts de mesure, l'inertie électronique génère des oscillations amorties après les fortes variations du signal (voir les inserts en Figure IV-9). Ce qui peut également entraîner l'enregistrement de signaux bruts négatifs. Les signaux sont enregistrés avec un grand nombre de points (>100000pts/s) par un oscilloscope rapide (Lecroy-Waveurfer 4400XS).



**Figure IV-9: Enregistrement brut de l'intensité injectée et transmise en fonction du temps**

Les signaux transmis sont ensuite tracés en mode XY. On représente ainsi directement l'intensité transmise en fonction de l'intensité injectée (Figure IV-10). Cette représentation permet de visualiser clairement le comportement mono- ou bi-stable de la cavité.



**Figure IV-10: Représentation en mode XY de l'intensité transmise en fonction de l'intensité incidente**

On réalise alors pour différentes valeurs de detuning l'enregistrement des fonctions de transfert en intensité (Figure IV-11).

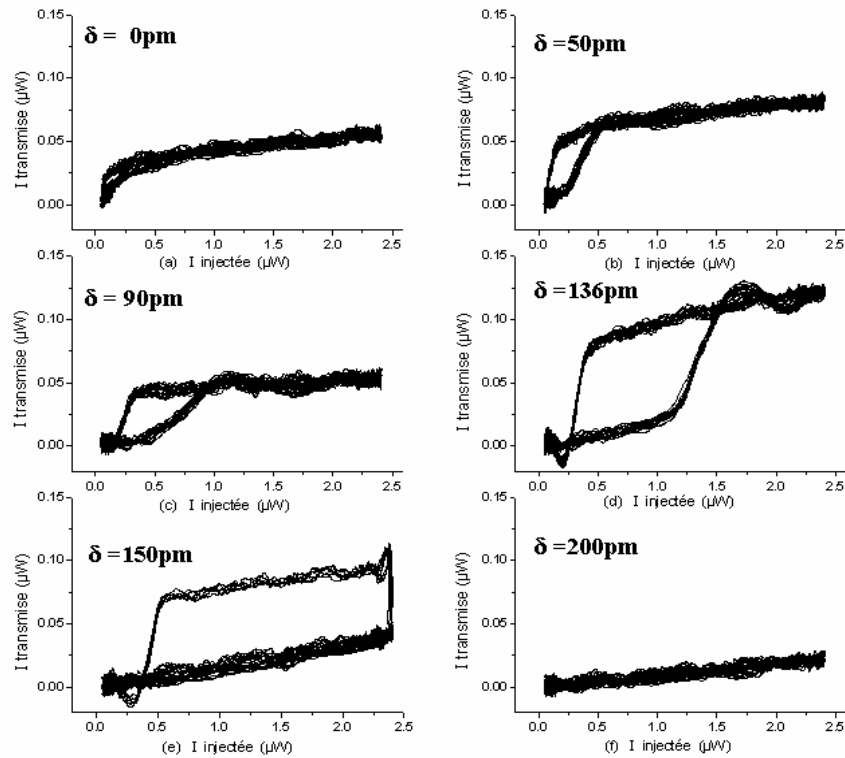


Figure IV-11: Fonctions de transfert en intensité de la cavité 5 mesurées en fonction du detuning  $\delta$

On a représenté sur la figure précédente une douzaine de cycles en intensité injectée (modulation entre 0 et  $2.4\mu\text{W}$  à  $1.04\text{kHz}$ ), pour des detuning allant de 0 à  $200\text{pm}$ . On observe que lorsque le detuning est négatif ou nul (a), les cycles d'hystérésis sont fermés, la cavité est monostable. La très faible ouverture des cycles est due au déphasage électronique introduit entre la détection de la référence et de la transmission. Lorsque le detuning devient positif ( $\delta = 50\text{pm}$ ), on observe une 'ouverture' du cycle. Il existe alors deux valeurs distinctes de transmission pour une même valeur d'intensité injectée en fonction de l'état précédent de la cavité. La cavité a un régime de fonctionnement bistable. En augmentant le detuning on augmente l'ouverture du cycle d'hystérésis. La cavité fonctionne en régime bistable jusqu'à une valeur de detuning maximum pour laquelle les cycles sont ouverts ou fermés en fonction du bruit de l'injection (e). Enfin, lorsque le detuning est trop important, le cycle d'hystérésis se referme, la puissance injectée n'est plus suffisante pour passer de l'état bas à l'état haut. La cavité retrouve un fonctionnement mono-stable (f).

En moyenne, on observe que la transmission maximale augmente avec le detuning en accord avec la transmission spectrale mesurée et les prédictions du modèle. On remarque également que la transmission diminue malgré l'augmentation du detuning (cas (c) et (e)) ces diminutions de la transmission maximale sont dues aux oscillations parasites évoquées dans le paragraphe III.2.c.

### IV.3.b. Modélisation des fonctions de transfert en intensité

On va maintenant comparer les fonctions de transfert en intensité mesurées avec les fonctions de transfert obtenues grâce à notre modèle.

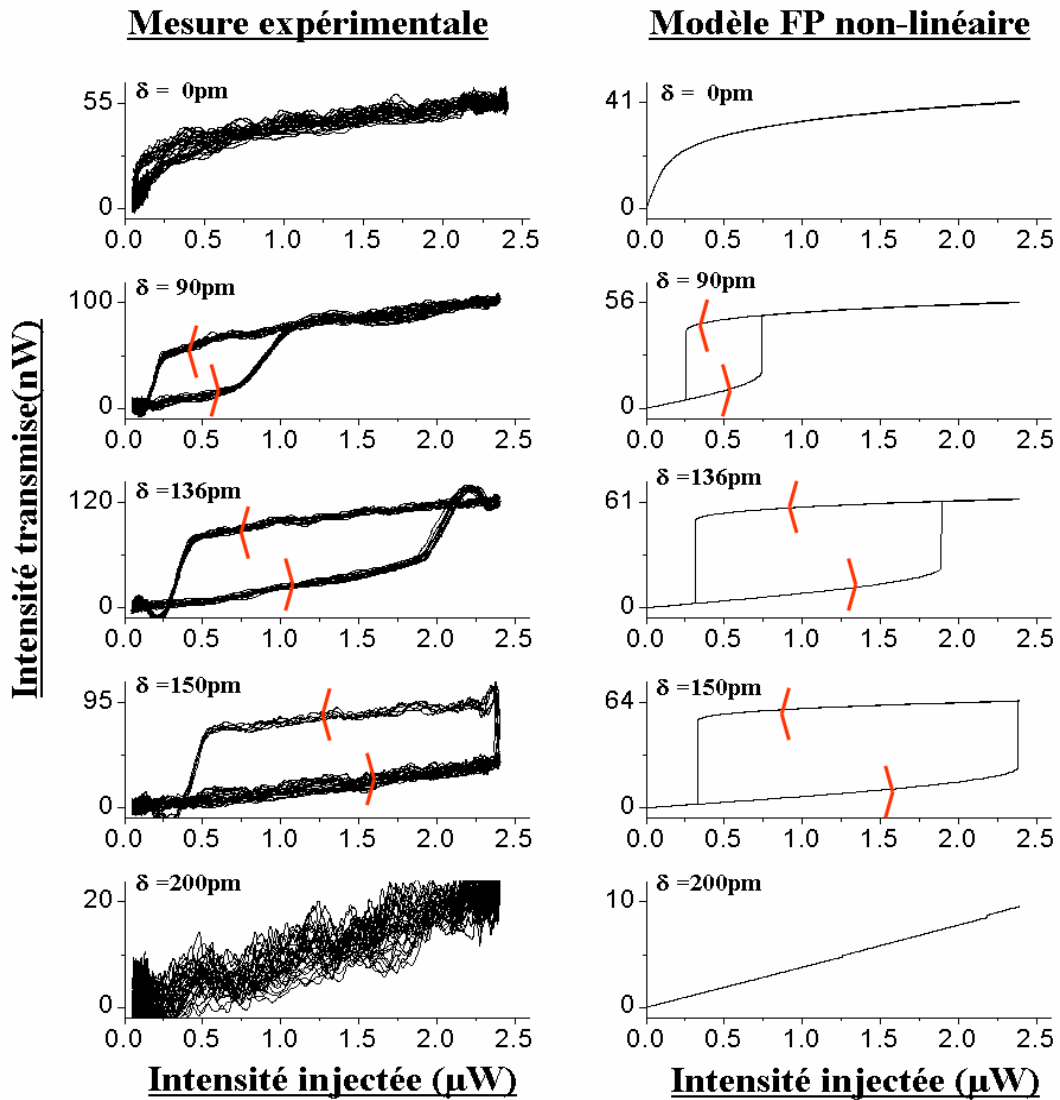


Figure IV-12: Comparaison des fonctions de transfert en intensité de la cavité 5 mesurées et calculées pour différents detuning  $\delta$

Pour déterminer à partir du modèle FP non-linéaire la valeur des coefficients de variation de l'indice, nous avons recherché le meilleur accord possible entre les valeurs de detuning  $\delta$  mesurées et calculées pour l'ouverture et la fermeture des cycles d'hystérésis ainsi que les valeurs de changement d'état de la cavité (bas↔haut). Les simulations montrent que la contribution de l'intensité injectée dans la cavité à la variation de l'indice est majoritairement due au coefficient d'ordre 2. Ce qui confirme que l'effet observé est principalement dû aux effets thermiques induits par l'absorption à 2 photons dans la cavité [Barclay05],[Uesugi06].

*Remarque* : les coefficients obtenus ne sont pas comparables à ceux du silicium massif. En effet, dans notre cas ils cachent l'effet de la surtension du champ due au facteur de qualité de la cavité. Nous nous sommes donc limité à déterminer les coefficients moyens qui ne prennent pas en compte l'évolution des caractéristiques de la cavité.

Nous avons donc confirmé sans ambiguïté que les cavités utilisées peuvent présenter un comportement bistable pour de très faibles intensités injectées ( $\sim 2.5\mu\text{W}$ ). Nous avons également quantifié l'influence de l'intensité injectée sur l'indice dans la cavité confirmant ainsi la capacité de notre modèle FP à modéliser le comportement de la cavité en régime non-linéaire, tant en fonction de la longueur d'onde que de l'intensité injectée. Nous allons maintenant étudier l'effet de la sonde sur le régime de stabilité de la cavité.

## **V. Etude de l'interaction de la nano-cavité avec une sonde champ proche**

### **V.1. Interaction en régime linéaire**

#### **V.1.a. Etude de l'interaction sonde champ proche - cavité**

Comme nous l'avons évoqué dans l'introduction (paragraphe II.3.d), lors de l'étude de micro- et nano-cavité en champ proche optique, la sonde peut perturber la structure du champ électromagnétique dans la cavité. Dans le cas des cavités Fabry-Perot étudiées, la dimension de l'apex de la sonde est de l'ordre de la dimension de la cavité et l'effet attendu n'est donc pas négligeable. Après la démonstration théorique de A.F. Koenderink et al [Koenderink05], Cluzel et al et Lalouat et al ont confirmé expérimentalement cet effet, montrant également que la perturbation est proportionnelle à l'intensité du champ détecté par la sonde [Cluzel08],[Lalouat08a&b]. L'effet de la sonde sur les cavités est particulièrement difficile à modéliser car plusieurs paramètres entrent en jeu. En effet, bien qu'il y ait dégradation du coefficient de qualité, il semble également qu'il puisse y avoir 'recyclage' des pertes [Velha08].

Certaines publications montrent que la perturbation de la cavité est associée à une dégradation du facteur de qualité comme dans le cas des études reportées par [Koenderink05],[Märki06]. Cependant, dans notre configuration, il a été montré qu'il existe un régime de faible perturbation où la longueur d'onde de résonance de la cavité peut être décalée vers les hautes longueurs d'onde tout en ne dégradant que très faiblement le facteur de qualité de la cavité [Mujumdar07]. Dans ce cas on assimile l'effet de la pointe à un modulateur de phase dans le modèle FP [Cluzel08]. Le modèle prédictif de l'évolution du facteur de qualité des différentes cavités, proposé par P.Velha (Figure V-1) montre que quelque soit la position de la sonde (si son apex n'excède pas 300nm), la dégradation du



facteur de qualité dans notre configuration n'excède pas 10% du coefficient de qualité sans sonde.

*Etude en champ proche des micro-cavités*

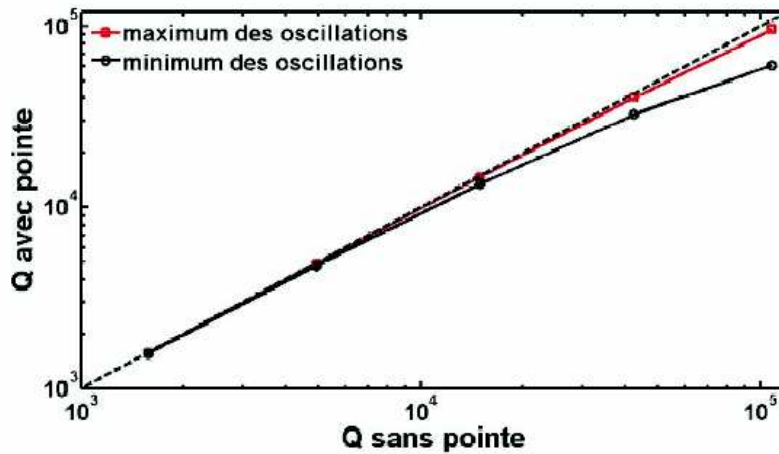


Figure V-1: Evolution du facteur de qualité pour des cavités de coefficient de qualité variable avec ou sans sonde champ proche [Velha08].

Des mesures réalisées au sein de notre laboratoire confirment ce régime de faible perturbation du facteur de qualité si l'on utilise une sonde purement diélectrique dont l'apex est de la dimension de la cavité [Cluzel08],[Lalouat08b]. L'étude suivante va nous permettre de confronter une nouvelle fois ce modèle de pur déphaseur à l'expérience.

V.1.b. Mesure du déphasage introduit par la sonde

Pour cette étude, nous utilisons une sonde champ proche purement diélectrique (silice) dont l'apex est d'environ 200nm. Le contrôleur électronique utilisé nous permet de positionner la sonde par rapport à la cavité dans le plan de l'échantillon, mais également de contrôler la hauteur qui la sépare de la cavité.

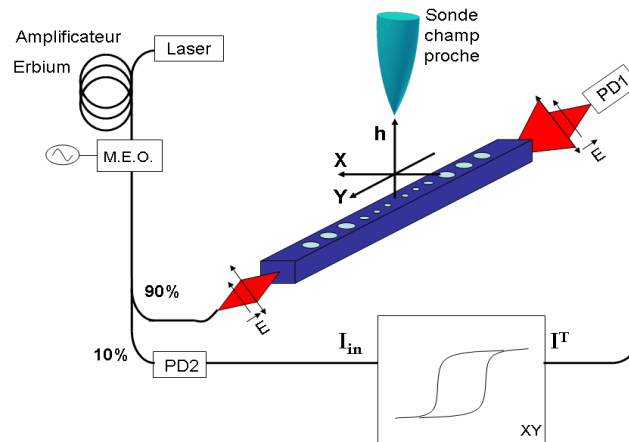


Figure V-2: Schéma expérimental permettant d'enregistrer les fonction de transfert en intensité des cavités en fonction de la position de la sonde

Pour des raisons purement techniques (variation de la synchronisation sur le démarrage du balayage  $\sim 100\mu\text{s}$ ), il est particulièrement difficile d'effectuer une mesure précise du décalage en longueur d'onde introduit par la sonde en régime linéaire. Nous avons donc effectué cette mesure, en régime non-linéaire, en mesurant les fonctions de transfert pour différentes longueurs d'onde d'injection, avec et sans sonde. En effet, le décalage maximum en longueur d'onde pour lequel on obtient un cycle d'hystérésis ouvert est observable de façon précise. On mesure ce décalage en comparant la valeur obtenue sans sonde champ proche ( $h \gg 1\mu\text{m}$ ) puis avec une sonde champ proche en asservissement ( $h \sim 5\text{nm}$ ) en prenant soin de placer la sonde sur un maximum de champ pour obtenir la perturbation la plus importante possible. On vérifie ensuite qu'à une hauteur de  $200\text{nm}$ , l'effet de la sonde n'est plus mesurable. On réalise cette mesure pour différentes hauteurs et on traduit ensuite le décalage en terme de phase. Les valeurs déterminées pour la cavité 5 sont  $a = 80\text{nm}$  et  $\varphi_0 = 1,2 \cdot 10^{-3}$  rad. Ces valeurs sont comparables à celles observées dans les études précédentes [Lalouat07],[Cluzel08].

### V.1.c. Description et limites du modèle FP associé

Pour réaliser les simulations sur la perturbation induite par la sonde, nous avons donc ajouté à la phase de notre modèle un terme de phase dépendant de la distance sonde-cavité. On écrit alors que  $\varphi = \varphi_{\text{lin}} + \varphi_{\text{NL}} + \varphi_{\text{sonde}} = \varphi_{\text{lin}} + \varphi_{\text{NL}} + \varphi_0 e^{\frac{-h}{a}}$ .  $\varphi_0$  est le déphasage maximum introduit par la sonde au contact ( $h_{\text{sonde}} \sim 5\text{nm}$ ) et  $a$  permet de rendre compte de la longueur d'interaction entre la sonde et la cavité. Les paramètres  $\varphi_0$  et  $a$  sont déduits des mesures du décalage en longueur d'onde du maximum de transmission.

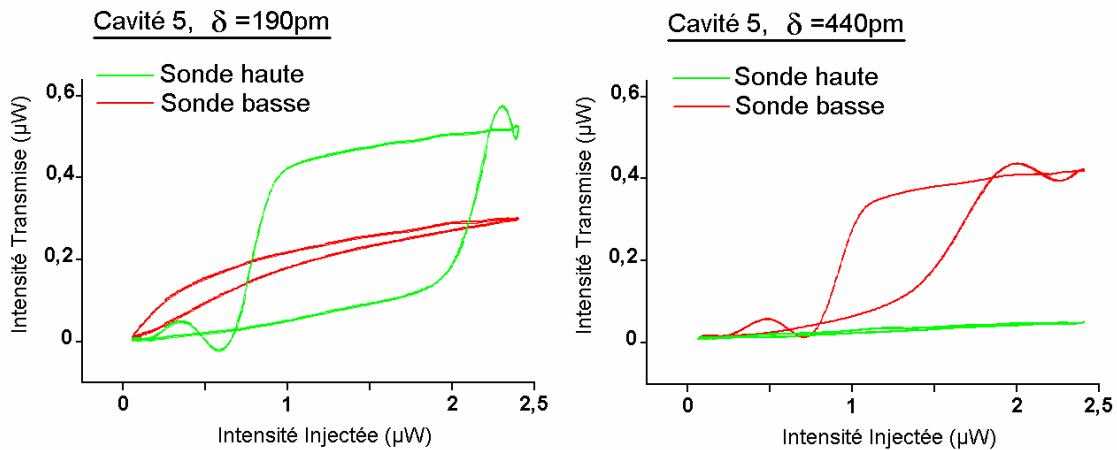
Une nouvelle fois, notre modèle reste très simple, il ne prend pas en compte les possibles modifications des caractéristiques de la cavité en présence de la sonde champ proche. Nous verrons ainsi si le modèle de pur déphaseur reste ou non valable. De plus, la mesure de la perturbation est assujettie au positionnement de la sonde dans le champ proche de la cavité. Par la suite les mesures seront effectuées de manière très rapide pour ne pas prendre le risque que notre modèle soit faussé par une dérive mécanique ou thermique du système global  $\{\text{scanner piézo-électrique, sonde, cavité, injection}\}$ .

Nous disposons maintenant d'un modèle complet auquel nous pourrions confronter nos mesures expérimentales. Nous allons maintenant décrire les mesures effectuées en régime non-linéaire en fonction de la distance sonde-cavité ( $h_{\text{sonde}}$ ). Puis nous utiliserons ce modèle pour mieux comprendre l'effet de la sonde sur les caractéristiques du fonctionnement de la cavité.

## V.2. Interaction en régime non-linéaire

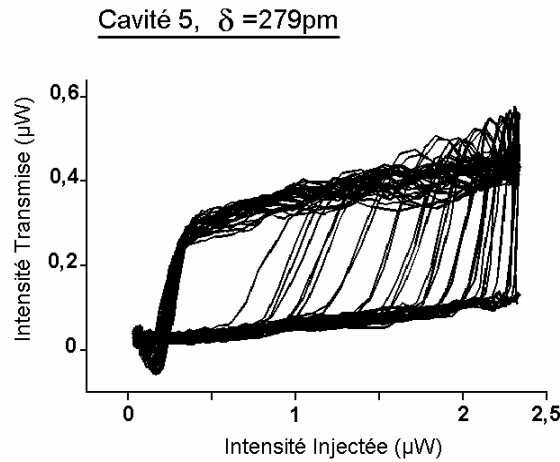
### V.2.a. Description du mode opératoire

Dans un premier temps nous avons pu observer l'effet de la sonde sur la stabilité de la cavité pour deux positions de sonde différentes : très en retrait (sonde haute  $h_{\text{sonde}} \gg 1\mu\text{m}$ ) et au contact (sonde basse  $h_{\text{sonde}} \sim 5\text{nm}$ ). On remarque que pour certaines valeurs de detuning, le déplacement de la sonde permet le passage de la cavité du régime mono-stable au régime bi-stable et inversement.



**Figure V-3: Comparaison des cycles d'hystérésis mesurés pour deux hauteurs de sonde différentes à deux valeurs de detuning choisis**

Pour la suite des mesures, nous avons choisi d'enregistrer pour différentes longueurs d'onde et pour un grand nombre de distances sonde-échantillon la fonction de transfert en intensité de la cavité. Le contrôleur électronique ne permet pas de maintenir de façon satisfaisante la sonde à une grande distance de l'échantillon. Il n'est donc pas possible d'enregistrer les fonctions de transfert en conservant la sonde à une distance fixe de l'échantillon. Nous avons donc choisi de réaliser ces mesures en 'dynamique'. Nous avons donc effectué des approches-retraits en continu de la sonde. La distance sonde-cavité est ainsi modulée entre  $\sim 5$  et  $200\text{nm}$  à la fréquence de  $10\text{Hz}$ . Le mouvement en dynamique de la sonde est lui bien calibré et le 'contact' ( $h \sim 5\text{nm}$ ) de la sonde avec la structure permet de connaître précisément le démarrage d'un cycle. La transmission et la référence sont enregistrées en parallèle du mouvement de la sonde. La modulation de l'injection étant de  $1\text{kHz}$ , on enregistre au moins un cycle pour  $5\text{nm}$  de déplacement de la sonde. C'est le rapport maximum que permet notre configuration expérimentale entre les deux modulations. Pour des detuning négatifs ou trop importants ( $>500\text{pm}$ ) le mouvement de la sonde n'entraîne aucune modification notable de la transmission de la cavité. Par contre, avec ce mode opératoire, dans la zone intermédiaire, on peut observer en direct la modification progressive de l'ouverture du cycle d'hystérésis en fonction du mouvement de la sonde Figure V-4.



**Figure V-4: Fonctions de transfert en intensité de la cavité 5 enregistrées en continu pendant le mouvement de la sonde**

### V.2.b. Interprétation des mesures à l'aide du modèle FP

Notre modèle se résume donc de la façon suivante. On considère une cavité de type Fabry-Perot dont la réflectivité et la transmission des miroirs, ainsi que la distance entre les miroirs sont connues. Notre modèle est basé sur la formule d'Airy

$$I^T = I^{inc} \frac{T^2}{(1-R)^2 + 4R \sin^2(\varphi)}$$

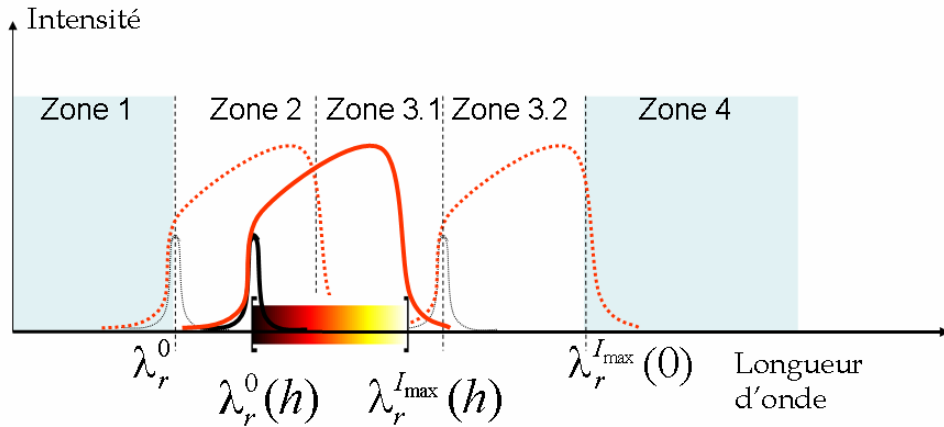
avec une phase décomposée en trois parties : la partie linéaire,

la partie non-linéaire et la modulation due à l'effet de la sonde

$$\varphi = \varphi_{lin} + \varphi_{NL} + \varphi_{sonde} = \frac{2\pi n_0 L_c}{\lambda} + \frac{2\pi \Delta n(I^2) L_c}{\lambda} + \varphi_0 e^{-\frac{h}{a}}$$

Nous connaissons grâce aux mesures précédentes les différents paramètres nécessaires à ce modèle.

Nous allons maintenant étudier en fonction de la longueur d'onde de travail  $\lambda_w$ , quels vont être les différents régimes de modulation de la bistabilité optique de la cavité en fonction de la hauteur de la sonde. Schématiquement, on définit pour une hauteur  $h$ , la longueur d'onde de résonance de la cavité en régime linéaire  $\lambda_r^0(h)$  et la longueur d'onde maximale de résonance pour le maximum d'intensité injectée  $\lambda_r^{I_{max}}(h)$ . Entre ces deux longueurs d'onde se trouve la partie du spectre que nous qualifierons de 'zone de bistabilité'. Dans cette gamme de longueur d'onde, représentée par l'échelle de couleur sur la Figure V-5, la cavité a un régime de fonctionnement bistable. C'est ce régime qui bien sûr nous intéresse tout particulièrement. Nous avons vu dans la partie IV.3.b que l'ouverture du cycle d'hystérésis dû à la bistabilité de la cavité se fait progressivement de  $\lambda_r^0(h)$  à  $\lambda_r^{I_{max}}(h)$ . Puis il se ferme brutalement pour  $\lambda_w > \lambda_r^{I_{max}}(h)$ . Pour simplifier notre raisonnement, nous allons schématiquement 'découper' le spectre autour de la résonance à basse puissance en 4 régions distinctes (Figure V-5).



**Figure V-5: Représentation schématique des différents zones de régimes mono- et bi-stable des cavités**

Les zones 1 et 4 sont les zones spectrales inaccessibles pour la résonance de la cavité dans notre configuration, i.e. la phase ne peut pas être égale à  $2\pi$  pour les longueurs d'onde concernées. La zone 2 est définie comme la zone de bi-stabilité avec une sonde haute ( $h > 200\text{nm}$ ), la zone 3 est définie comme la zone de bi-stabilité 'accessible' grâce à l'effet de la sonde. Elle peut être redéfinie en deux zones, la zone 3.1, zone intermédiaire qui peut ne pas exister si la perturbation en longueur d'onde due à la sonde est inférieure à la largeur spectrale de la zone de bi-stabilité et enfin, la zone 3.2 qui est la zone de bi-stabilité pour une sonde basse ( $h \sim 5\text{nm}$ ).

Nous allons choisir une longueur d'onde de travail  $\lambda_w$  située dans la zone 3.1 (Figure V-5). Le detuning expérimental correspondant est de 300pm. Cette configuration va nous permettre un passage en revue complet des différentes évolutions du régime de fonctionnement de la cavité en fonction de la hauteur de la sonde Figure V-6. Comme sur la Figure V-5, la zone de bistabilité est représentée schématiquement par l'échelle de couleur. Pour commencer, nous considérons donc une cavité dans un régime de fonctionnement mono-stable, avec une sonde champ proche placée loin de la cavité (Figure V-6(a)). Lorsque la sonde se rapproche, la longueur d'onde maximale de la zone de bi-stabilité est décalée vers les hautes longueurs d'onde. Lorsque  $\lambda_r^{I_{max}}(h) = \lambda_w$  la cavité entre brusquement dans le régime de fonctionnement bi-stable (Figure V-6(b)). Cette transition se fait de façon discontinue, la transmission passe d'un niveau très faible (état bas) à la transmission maximale (état haut). L'ouverture du cycle d'hystérésis est également maximale. Puisque la sonde continue de se rapprocher de la cavité, la zone de bistabilité continue de se décaler vers les hautes longueurs d'onde. La sonde permet dans ce cas une modification progressive de l'ouverture du cycle d'hystérésis (Figure V-6(b,c&d)). Finalement, le cycle d'hystérésis se ferme lorsque  $\lambda_r^0(h) = \lambda_w$  (Figure V-6(e)). La cavité est alors à nouveau en régime mono-stable. Cette fois la transition entre le régime bi-stable et le régime mono-stable se fait de façon progressive.

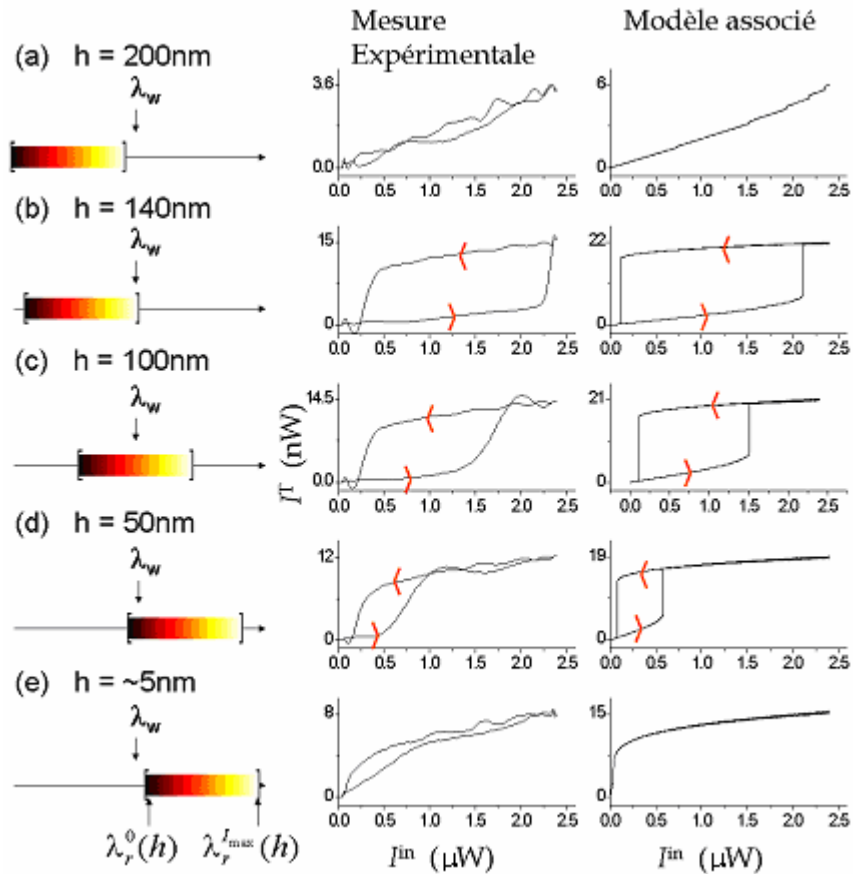


Figure V-6: Evolution du cycle d'hystérésis mesuré et calculé en fonction de la hauteur de la sonde

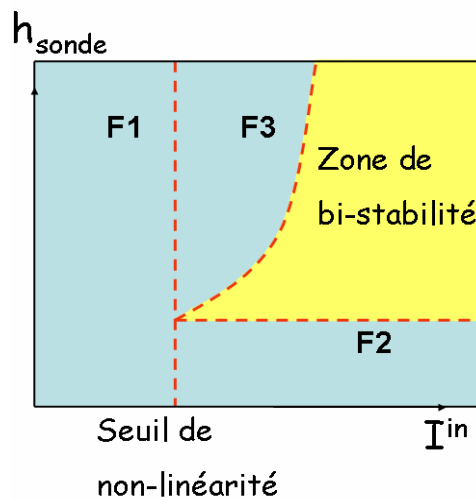
Maintenant que nous comprenons mieux les mécanismes mis en jeu, nous allons tenter de synthétiser au mieux les différentes mesures. D'une façon plus générale, nous souhaitons connaître le régime de fonctionnement de la cavité en fonction des paramètres influents : longueur d'onde, intensité injectée et hauteur de sonde. Nous avons donc choisi de tracer l'aire du cycle d'hystérésis pour différencier les cycles mono-stables (aire nulle) et bi-stables. On représente alors la valeur de cette aire dans des diagrammes dits 'de stabilité' en fonction des différents paramètres. Ces diagrammes permettront en effet de connaître la stabilité de la cavité pour une longueur d'onde donnée en fonction de l'intensité injectée et de la distance sonde-échantillon.

### V.3. Synthèse, Diagramme $h_{\text{sonde}}-I^{\text{in}}$

#### V.3.a. Description de diagrammes $h_{\text{sonde}}-I^{\text{in}}$

Ces diagrammes sont réalisés pour connaître rapidement aux différentes longueurs d'onde de travail le régime de fonctionnement de la cavité. Puisque le fonctionnement bistable est caractérisé par l'ouverture du cycle d'hystérésis, c'est cette ouverture que nous allons quantifier pour chaque longueur d'onde  $\lambda_w$  en fonction des deux autres paramètres

influent que sont l'intensité injectée et la hauteur de la sonde ( $I, h_{\text{sonde}}$ ). On se place donc dans un quart d'espace  $I^{\text{in}} > 0$  et  $h_{\text{sonde}} > 0$ . Pour des longueurs d'onde de travail dans les zones 1 et 4 de la Figure V-5, le résultat est bien sûr prévisible, la cavité ne sera jamais bistable. Pour les zones 2 et 3, nous allons commencer par définir les frontières entre la zone de bistabilité et les zones de fonctionnement mono-stable de la cavité. La première frontière (F1 sur la Figure V-7) est définie quelque soit  $h_{\text{sonde}}$ . En effet, si l'intensité injectée est trop faible, la bistabilité n'est pas observable. On est en régime linéaire. En dessous d'une intensité seuil, la cavité aura toujours un fonctionnement mono-stable, quelle que soit la position de la sonde. Si maintenant la sonde perturbe trop fortement la cavité, i.e. si la longueur d'onde de travail devient inférieure à la longueur d'onde de résonance en régime linéaire  $\lambda_w < \lambda_r^0(h)$ , alors, quelque soit l'intensité disponible, la cavité restera dans un régime de fonctionnement mono-stable (F2 sur la Figure V-7). Cette frontière représente le passage de la zone 2 à la zone 1 sur la Figure V-5. La troisième frontière se définit comme le passage de la zone 2 à la zone 3. Dans ce cas, si l'intensité augmente ou si la hauteur de la sonde diminue, la cavité devient bistable. Cette frontière (F3 sur la Figure V-7) est définie par l'équation  $\varphi = 2\pi = \frac{2\pi n_0 L_c}{\lambda_w} + \frac{2\pi \Delta n(I^2) L_c}{\lambda_w} + \varphi_0 e^{-\frac{h}{a}}$ . Avec ces trois frontières, on définit la 'zone de bi-stabilité' pour laquelle la cavité aura un fonctionnement bistable. Suivant la longueur d'onde injectée, le diagramme  $h_{\text{sonde}}-I^{\text{in}}$  va donc être représenté par une région spécifique de ce diagramme global.



**Figure V-7: Diagramme schématique  $h_{\text{sonde}}-I^{\text{in}}$  représentant les différentes régions de mono- et bi-stabilité de la cavité**

Nous allons maintenant tracer ces diagrammes pour des longueurs d'onde choisies dans chacune des différentes zones spectrales que nous comparerons ensuite aux diagrammes expérimentaux.

### V.3.b. Comparaison des diagrammes $h_{\text{sonde}}-I^{\text{in}}$ calculés et mesurés

Pour réaliser ces diagrammes, on mesure donc l'aire (en  $\mu\text{W}^2$ ) définie entre l'état bas et l'état haut. Si le cycle est fermé, l'aire est nulle, les deux états sont confondus. Si il est ouvert, on intègre la différence entre les points de fonctionnement des états bas et haut de la cavité, en prenant soin dans le cas expérimental d'exclure du calcul les différences dues au déphasage entre la mesure de l'injection et de la collection. Dans le cas expérimental, pour moyenner la valeur des cycles d'hystérésis obtenus en fonction de la distance sonde-échantillon, on effectue cette mesure sur plusieurs allers-retours complets de la sonde, ce qui permet également de moyenner un éventuel effet d'hystérésis dû au scanner piézo-électrique.

Dans cette partie, on compare finalement les diagrammes mesurés et calculés pour des longueurs d'onde de travail dans chacune des zones 2, 3.1 et 3.2 définies dans la partie V.2.b. Dans le cas de la cavité 5, les detuning correspondants sont respectivement de 254, 301 et 450 pm. On ne représente délibérément pas les diagrammes monochromes obtenus pour des longueurs d'onde de travail dans les zones 1 et 4 où la cavité ne fonctionne qu'en régime mono-stable.

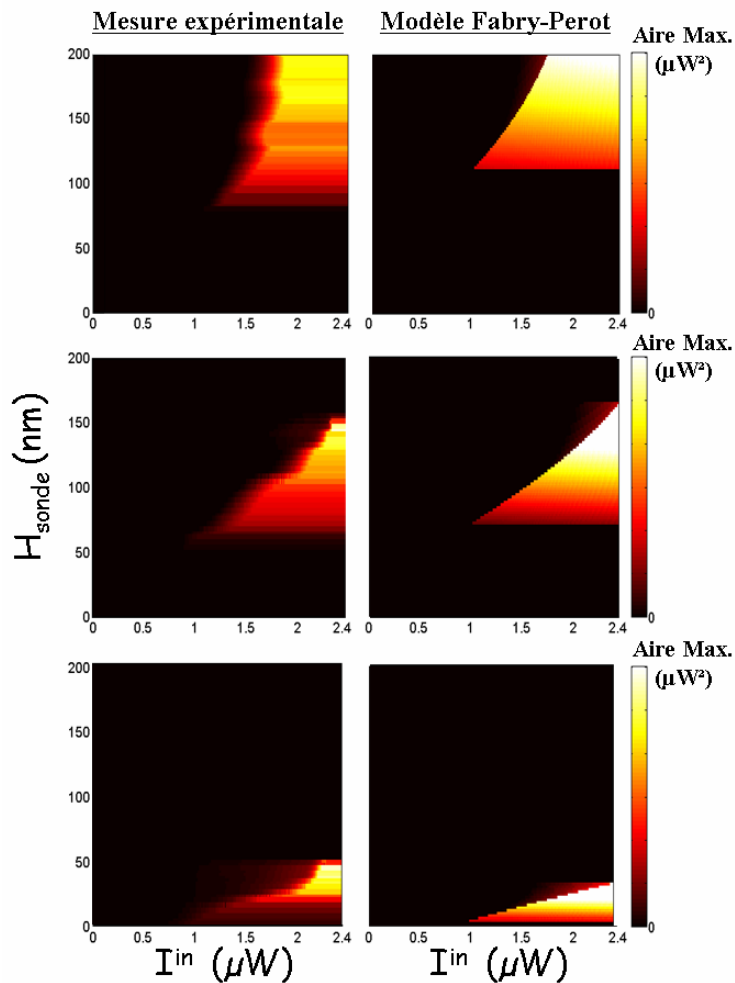


Figure V-8: Diagrammes  $h_{\text{sonde}}-I^{\text{in}}$  expérimentaux et simulés pour trois detuning différents,  $\delta = 254, 301$  et  $450$  pm



Sur les différents diagrammes, on retrouve bien les frontières évoquées dans la partie V.3.a. On remarque que dans la zone de bistabilité, l'ouverture du cycle d'hystérésis est proportionnelle à la hauteur de la sonde. Les échelles de couleurs sont identiques pour chacun des detuning. La normalisation des diagrammes est effectuée avec la mesure de l'aire maximum du cycle d'hystérésis calculé. Cette représentation, en plus de donner l'information sur le régime de fonctionnement de la cavité, permet également une évaluation globale de la capacité de notre modèle à modéliser le comportement du système  $\{sonde + cavité \text{ en régime non-linéaire}\}$ . Le bon accord obtenu pour la cavité 5 entre les diagrammes  $h_{sonde}-I^{in}$  simulés et mesurés est confirmé dans l'Annexe A pour les autres cavités étudiées.

# Conclusions et perspectives de la 2<sup>ème</sup> partie

## Conclusions

Dans cette partie, nous avons donc étudié les effets de l'interaction d'une sonde champ proche avec une nano-cavité Fabry-Perot à cristal photonique dans différents régimes de fonctionnement. Pour cela, nous avons mené parallèlement l'étude et la simulation du comportement des cavités en régime linéaire et non-linéaire, en fonction de la distance sonde-cavité. Dans un premier temps, nous avons caractérisé en transmission les propriétés des différentes cavités étudiées en régime linéaire : réflectivité, transmission, longueur d'onde de résonance et indice du mode résonant. Ces caractéristiques nécessaires ont servi de base à notre modèle pour les différentes étapes de cette étude. Dans un deuxième temps, nous avons caractérisé ces mêmes cavités en régime non-linéaire. Nous avons ainsi pu observer pour de très faibles puissances injectées ( $\sim$  quelques  $\mu\text{W}$ ) le comportement bistable de ces cavités. Aidés du modèle Fabry-Perot développé, nous avons pu identifier l'origine des non-linéarités responsables de la bistabilité. Finalement, nous avons étudié l'interaction entre la sonde champ proche et les cavités en régime non-linéaire. Nous avons ainsi confirmé la validité du modèle de pur déphaseur utilisé pour modéliser l'influence de la sonde champ proche sur la résonance des cavités en régime linéaire et non-linéaire. En complément du bon accord obtenu entre les modélisations et les expériences réalisées, le modèle complet développé nous a donné une bonne compréhension des mécanismes mis en jeu dans le fonctionnement global du système étudié.

Pour conclure, au-delà du caractère délicat de l'observation d'objets fonctionnalisés de dimension sub-micrométrique, cette étude a permis de démontrer la possibilité de moduler la stabilité de nano-cavités en modifiant leur environnement optique en champ proche [Brissinger09].

## Perspectives

Bien que notre modèle permette une modélisation globale du système, il pourrait être intéressant d'obtenir des informations supplémentaires sur les phénomènes mis en jeu. Si les non-linéarités du silicium dans les cavités à cristal photonique semblent bien renseignées dans la littérature, la discussion reste très ouverte sur les modifications des paramètres intrinsèques de la cavité. En effet, les paramètres R et T, qui sont obtenus en régime linéaire, varient en fonction de la puissance injectée dans la cavité et de la perturbation de la sonde. Il semble donc intéressant d'affiner le modèle présenté pour obtenir des données supplémentaires quant à l'évolution de ces paramètres. Cette étude permettrait de gérer de façon optimale les pertes du système global en vue de son intégration comme composant nanophotonique. En effet, par analogie avec le transistor électronique, nous sommes ici en présence d'un transistor optique [Perez04]. Les transistors ont la particularité de présenter des transmissions très différentes pour un même signal entrant en fonction d'un paramètre

extérieur. Ces transistors sont à la base de l'électronique. En algèbre de Boole, le système global présenté dans cette étude peut être considéré comme une fonction 'et' (Figure 0-1.) En effet, pour un detuning donné, il est nécessaire d'être en régime non-linéaire **et** d'avoir une hauteur de sonde donnée pour obtenir une forte transmission.

Régime Sonde	Linéaire	Non- linéaire
Haute	0	0
Basse	0	1

**Figure 0-1: Table de vérité de la fonction globale du système {sonde + cavité}**

Pour le développement de fonctions optiques [Abraham82] différents contrôles de la bistabilité optique ont été développés. Le contrôle du décalage de la résonance en fait bien sûr partie [Agrawal79]. Ce contrôle peut être réalisé avec un courant électrique [Smith77], en ajustant la température [Forsmann88],[Grohs90] ou bien encore avec un second faisceau optique [Gibbs85],[Almeida04b],[Belotti10]. La modulation démontrée dans cette étude est basée sur un effet opto-mécanique [Brissinger09]. Cette modulation permet une transition selon deux voies différentes en fonction du detuning choisi, l'une progressive et l'autre brusque. Cependant, pour l'intégration de ce système en tant que composant, un des critères importants est la fréquence de travail. Lors de l'étude réalisée, la fréquence de modulation utilisée n'est que de l'ordre du kHz. Des études montrent qu'à des fréquences plus élevées, les non-linéarités du silicium ont l'effet inverse, elles diminuent l'indice optique du silicium et donc la longueur d'onde de résonance de la cavité [Baron09]. Il serait particulièrement intéressant de savoir si la rapidité de modulation de l'effet opto-mécanique présenté est limité au temps d'établissement du champ dans la cavité ou si il est limité par un autre phénomène. La question reste aujourd'hui ouverte.

Le système étudié présente donc de multiples possibilités de développements vers des fonctions pratiques utilisables en optique intégrée. Le nombre de ces développements pourrait également augmenter grâce à l'association de plusieurs cavités du même type. Des travaux sur l'association de cavités en régime linéaire ont été réalisés au cours de la thèse de K. Foubert [Foubert09],[Foubert10]. L'étude de la perturbation de cet ensemble avec une sonde champ proche et/ou en régime non-linéaire reste à développer.





## 3<sup>ème</sup> Partie :

# Etude théorique et expérimentale des modes résonants de films minces métalliques

*Si la vie est complexe, c'est parce qu'elle a une partie réelle et une partie imaginaire.*

Attribuée à Sophus Lie (1842-1899)

## Introduction de la 3<sup>ème</sup> partie

### La plasmonique

La plasmonique est la branche de l'optique qui étudie l'interaction des ondes électromagnétiques avec les objets métalliques. Depuis quelques années, grâce à l'avènement des nanotechnologies, la plasmonique connaît un renouveau particulièrement fertile, dont on nous propose moult applications prometteuses ; capteurs [Homola06], transmission optique exaltée [Ebbesen98], guidage [Bérini09], spaser [Oulton09], méta-matériaux [Cai09]... Ces différentes applications s'appuient sur des modes électromagnétiques particuliers appelés 'plasmon', générés par l'interaction des ondes électromagnétiques avec le gaz d'électrons libres de la structure. Parmi eux, les modes de surface tiennent une place particulièrement importante. L'intérêt des physiciens pour ces modes de surface n'est pas nouveau et ne se limite pas aux matériaux métalliques. En effet, ce type de modes est largement étudié dans différents domaines du spectre électromagnétique depuis plus d'une centaine d'années

maintenant [Zenneck1907],[Sommerfeld1909]. C'est une cinquantaine d'années après ces travaux précurseurs que Rufus H. Ritchie s'intéresse tout particulièrement aux modes résonants qui apparaissent à l'interface entre un métal et un diélectrique [Ritchie57]. Aujourd'hui, la plasmonique est une branche particulièrement productive de la nanophotonique [Zayats05],[Maier07],[Shalaev07]. Les études actuelles profitent du perfectionnement des techniques de fabrication et des différents moyens de caractérisation en champ proche qui sont tout particulièrement adaptés à l'étude de ces modes résonants de surface.

Dans cette troisième partie nous nous sommes intéressés à l'étude en champ proche des modes résonants de films minces métalliques. Dans un premier temps, il nous a paru important de définir de façon exacte les différents modes propres de la structure. Nous verrons en effet dans le premier chapitre de cette partie que le calcul des modes propres de la structure étudiée est essentiel pour connaître la réponse du système à un excitateur donné. Des études récentes se sont concentrées sur le guidage possible des modes résonant de film mince [Dionne05], de rails [Bérini01] ou de fils métalliques [Verhagen09]. Mais nous avons souhaité ne pas nous limiter au strict cadre des modes guidés pour tracer l'ensemble des courbes de dispersion [Burke86]. Nous montrerons dans le chapitre VIII que cette approche est essentielle à la compréhension globale du phénomène d'excitation des modes de surface d'un film mince. Finalement, après avoir discuté différentes voies d'excitations optiques de ces modes résonants, nous tâcherons de mesurer en champ proche la structure des modes résonants excités par des marches d'or de différentes épaisseurs.

# VI. Plasmons et Résonance

## VI.1. Les plasmons

### VI.1.a. Plasmon de volume et de surface

Les propriétés électroniques des métaux nobles sont principalement dues au gaz d'électrons libres. Les électrons liés peuvent le plus souvent être considérés comme faisant partie intégrante des cœurs ioniques inertes du matériau considéré [Ashcroft&Mermin02]. On modélise alors avec le modèle de Drude, le comportement des électrons libres comme celui d'un gaz de particules auquel on applique les lois de la cinétique des gaz. Dans un tel système, sous l'effet d'un champ électrique oscillant, on observe alors qu'il existe une fréquence de résonance  $\omega_p$ , appelée 'fréquence plasma' pour laquelle la partie réelle de la fonction diélectrique  $\varepsilon(\omega)$  du matériau s'annule. A cette fréquence, les électrons oscillent de façon collective, on parle du 'plasmon' de volume en référence au quanta d'énergie de cette oscillation.

Dans le cas d'un métal de dimensions finies, plus précisément dans le cas où on observe une interface entre un métal et un diélectrique, on peut également observer un autre type de plasmon. En notant la constante diélectrique complexe du métal  $\varepsilon_m$  et celle réelle d'un diélectrique  $\varepsilon_d$ , l'interface étudiée conduit en effet à l'apparition d'un mode résonant appelé 'plasmon de surface'. Ce mode correspond à une oscillation du plasma d'électrons qui se propage le long de l'interface à la fréquence  $\omega_{ps}$  telle que  $\text{Re}(\varepsilon_m(\omega_{ps})) = -\varepsilon_d$  [Agranovich&Mills82]. On en déduit la valeur de  $\omega_{ps}$  dans le cadre du modèle de Drude en

fonction de  $\omega_p$ ,  $\omega_{ps} = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \varepsilon_d}}$ . L'existence de ces modes longitudinaux de surface a été

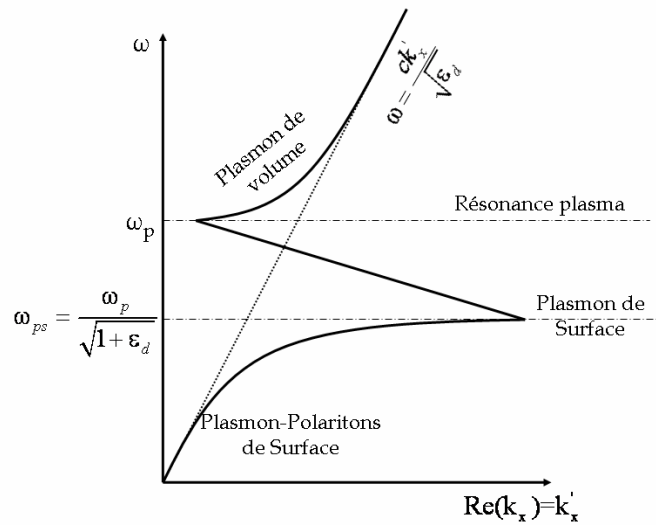
introduite pour la première fois en 1957 par Rufus H. Ritchie [Ritchie57].

### VI.1.b. Le plasmon-polariton de surface

Nous avons donc succinctement défini ce que sont la résonance plasma ou plasmon de volume d'un métal et le plasmon de surface. Nous allons finalement introduire les plasmon-polaritons de surface (PPS). D'une manière générale, un polariton est une quasi-particule modélisant le couplage entre un photon et une autre particule [Agranovich&Mills82]. Dans notre cas, cette autre particule n'est autre que le plasmon de surface que nous venons de définir. Le plasmon-polariton de surface représente donc la quasi-particule qui se propage le long d'une interface entre un métal et un diélectrique et qui est composée du couplage d'un photon et d'un plasmon de surface. Dans la limite de validité du modèle du gaz d'électrons libres, il s'agit de modes guidés à l'interface entre le métal et le milieu diélectrique. Contrairement aux plasmons radiatifs qui se trouvent à gauche de la



courbe de lumière, ces modes sont à sa droite. Ils ne peuvent donc pas se coupler directement avec les modes électromagnétiques en espace libre.



**Figure VI-1: Représentation schématique de la courbe de dispersion des plasmons d'une interface métal/diélectrique**

Les plasmons-polaritons de surface présentent cependant un double avantage : une forte exaltation du champ au plus près de l'interface et une faible extension spatiale autour de cette même interface. Cette faible extension est d'ailleurs une des raisons pour laquelle la microscopie champ proche est particulièrement adaptée à l'étude de ces modes particuliers. Mais avant d'observer expérimentalement ces modes de surface résonants, nous allons rappeler quelques généralités sur les systèmes physiques et expliciter l'intérêt de calculer les modes propres exactes associés au système étudié. Nous prendrons ainsi du recul sur les notions de mode propre et de résonance. Dans le paragraphe suivant, nous allons aborder de manière très généraliste ce que sont le problème homogène et montrer comment il permet le calcul des modes propres associés à un système quelconque. Pour cela, nous utiliserons l'exemple de l'oscillateur mécanique afin de discuter ces différentes notions dans un cas unidimensionnel. Ensuite nous présenterons en détail le travail réalisé pour trouver les solutions exactes des équations de dispersion du film métallique continu. Nous discuterons ensuite les possibilités d'excitation de ces modes et nous mesurerons finalement en champ proche les ondes excitées sur des films minces métalliques discontinus.

## VI.2. Généralités sur les systèmes physiques

Il est de notoriété publique que la voix d'une diva peut briser un verre de cristal et que le pas cadencé des soldats peut entraîner l'effondrement d'un pont. Dans un cas comme dans l'autre on dit que le verre ou le pont sont entrés en résonance. En physique, le phénomène de résonance est un phénomène d'accumulation de l'énergie par un système oscillant. Pour des fréquences d'excitation proches des fréquences de résonance du système, l'amplitude des oscillations va tendre vers des valeurs arbitrairement grandes. Dans ce chapitre, nous allons prendre du recul sur le phénomène de résonance d'un système physique en réponse à une excitation. Nous allons en effet préciser dans un cadre très général comment sont définis les modes propres d'un système et pourquoi, lors de la mise en résonance le système physique peut se déformer jusqu'à se dégrader. Ce chapitre servira de base à certaines de nos conclusions dans les chapitres suivants.

### VI.2.a. Le problème homogène

Le nombre de systèmes physiques envisageables, si il est dénombrable, n'est probablement borné que par l'imagination des concepteurs. Il est par conséquent peu probable de généraliser ce paragraphe à tous les cas possibles. Cependant, un grand nombre de systèmes physiques peuvent se décrire mathématiquement sous la forme de l'équation suivante :

$$\checkmark \quad \Theta S = E \quad \text{Eq. VI-1}$$

Dans cette équation,  $\Theta$  est un opérateur dont les dimensions et la complexité reste à définir en fonction du système étudié. Cet opérateur permet de relier  $E$  et  $S$  qui représentent respectivement les données entrantes et sortantes du système. Dans ce cadre très général, on définit les modes propres du système tels que pour des données entrantes nulles ( $E = 0$ ), il existe une ou plusieurs solutions non triviales, c'est-à-dire avec  $S \neq 0$ , à l'équation

$$\checkmark \quad \Theta S = 0 \quad \text{Eq. VI-2}$$

En physique on parle alors de la résolution du problème homogène. Les solutions non triviales de cette équation permettent de définir les modes propres du système. On cherche en fait si elles existent les solutions de cette équation pour un type de solution donné, indépendamment de tout excitateur. C'est cette opération qui permet d'aboutir à la définition de l'équation de dispersion du système considéré. Nous allons développer le cas simple de l'oscillateur mécanique avant de nous pencher sur les systèmes électromagnétiques qui nous intéressent plus particulièrement. Nous définirons clairement avec cet exemple ce que sont les modes propres et ce qu'implique l'excitation et la mise en résonance du système.

## VI.2.b. L'oscillateur mécanique

On va considérer le système suivant présenté sur la Figure VI-2, un objet de masse 'm' lié à un ressort idéal sans masse. La masse peut osciller en régime libre sur un plan horizontal selon l'axe Ox. Elle est ramenée vers sa position d'équilibre en  $x=0$  par le ressort de raideur  $K>0$  et est freinée par un coefficient de frottement  $\Gamma \geq 0$ . Il est également possible de forcer le mouvement de l'oscillateur par l'application d'une force sinusoïdale supplémentaire de pulsation  $\omega$  ( $F_\omega(t)$ ).

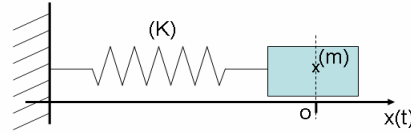


Figure VI-2: Schéma d'un système mécanique oscillant {masse+ressort}

D'après le principe fondamental de la dynamique dans notre repère, la position de la masse considérée en fonction du temps  $x(t)$  est modélisable par l'équation suivante

$$\checkmark \quad m\partial_t^2 x(t) + \Gamma\partial_t x(t) + Kx(t) = F_\omega(t) \quad \text{Eq. VI-3}$$

On reconnaît ici une équation différentielle linéaire du 2<sup>nd</sup> ordre avec second membre. Pour inscrire cet exemple dans la généralité des systèmes évoqués précédemment on considère donc la position de la masse à l'instant  $t$  comme la donnée sortante du système et la force  $F_\omega(t)$  comme la donnée entrante. On peut alors écrire le problème homogène de la manière suivante  $[m\partial_t^2 + \Gamma\partial_t + K]x(t) = \Theta x(t) = 0$ . On va donc chercher, si elles existent les solutions non triviales de cette équation.

Dans un premier temps, nous allons définir les modes propres du système sans amortissement et nous observerons l'amplitude du mouvement de la masse en fonction de la pulsation de la force d'entraînement que nous écrirons pour plus de simplicité  $F_\omega(t) = F_0 e^{i\omega t}$ . Si plusieurs forces sont appliquées, la linéarité de l'opérateur permet alors de sommer les différentes solutions particulières trouvées à chacune des forces. Dans un deuxième temps, nous observerons les mouvements de ce même système avec amortissement et les possibilités de mise en résonance.

### VI.2.b.i. Système sans amortissement

Dans le cas du système sans amortissement ( $\Gamma = 0$ ) on cherche à résoudre l'équation différentielle suivante

$$\checkmark \quad \partial_t^2 x(t) + \frac{K}{m} x(t) = \frac{F_\omega(t)}{m} \quad \text{Eq. VI-4}$$

Les solutions d'une telle équation se trouvent en additionnant les solutions générales de l'équation sans second membre à la solution particulière de l'équation avec second

membre  $x(t) = x_h(t) + x_p(t)$ . L'équation dite caractéristique de cette équation différentielle est définie à partir du problème homogène en posant  $\omega_0 = \sqrt{\frac{K}{m}} > 0$ .

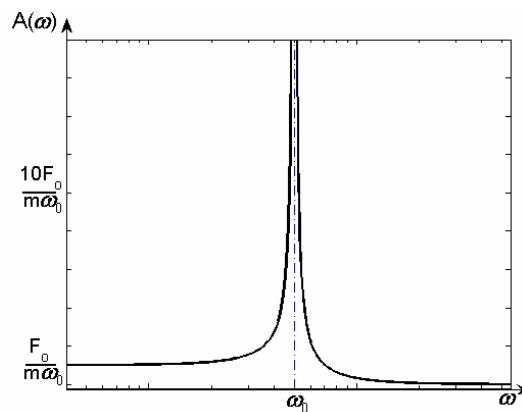
$$\checkmark \quad r^2 + \omega_0^2 = 0 \quad \text{Eq. VI-5}$$

Dans ce cas, le discriminant réduit vaut  $\Delta' = -\omega_0^2 < 0$ . Les deux racines sont donc des nombres imaginaires purs  $r_{\pm} = \pm i\omega_0$ . On appelle alors  $\omega_0$  la pulsation propre du système. Cette pulsation est associée au mode propre de ce système. En effet, si le système est mis hors équilibre, il oscillera naturellement et sans variation d'amplitude à cette pulsation. En utilisant la notation complexe, la position de la masse en fonction du temps peut alors s'écrire sous la forme suivante  $x_h(t) = Be^{+i\omega_0 t} + Ce^{-i\omega_0 t}$  avec B et C des constantes complexes qui s'expriment en fonction de la position ( $x_0$ ) et de la vitesse ( $v_0$ ) initiales de l'oscillateur.

On obtient alors  $B = \frac{1}{2}(x_0 - i\frac{v_0}{\omega_0})$  et  $C = \frac{1}{2}(x_0 + i\frac{v_0}{\omega_0})$ .

Dans le cas où il existe un excitateur, il faut ajouter à cette solution, la solution particulière de l'équation avec second membre. Quand  $\omega \neq \omega_0$ , celle-ci peut s'écrire sous la forme  $x_p(t) = A\sin(\omega t)$ , avec A l'amplitude réelle du mouvement de la masse. En introduisant cette solution dans l'équation du système on montre que  $A = \frac{F_0}{m(\omega_0^2 - \omega^2)}$ . La

Figure VI-3 présente la valeur de l'amplitude A en fonction de la pulsation de la force d'entraînement  $\omega$ .



**Figure VI-3: Valeur de l'amplitude du mouvement de la masse m en fonction de la pulsation  $\omega$  de la force d'entraînement**

On remarque que pour une force d'amplitude  $F_0$  fixée, l'amplitude du mouvement de la masse n'est plus bornée si la pulsation de la force d'entraînement est égale à la pulsation propre de l'oscillateur. Le système est alors excité au pôle, on dit qu'il y a résonance. Si la pulsation de la force d'entraînement est proche de la pulsation propre du système, on remarque également la forte augmentation de l'amplitude des oscillations. Le

système entre en résonance et l'amplitude du mouvement du système tend également vers des valeurs qui peuvent devenir arbitrairement grandes. En fait, dès que l'amplitude des oscillations de la masse est supérieure à l'extension maximale du ressort, le système physique est endommagé.

Dans le cas particulier où  $\omega = \omega_0$ , la solution de l'équation différentielle Eq. VI-4 qui permet de décrire le mouvement du centre de la masse peut se mettre sous la forme  $x(t) = (Bt + C)\sin(\omega_0 t)$  avec B et C des constantes réelles. On confirme alors bien la divergence de l'amplitude des mouvements de la masse en fonction du temps.

Nous allons maintenant procéder de même avec le système non idéal, i.e. avec amortissement, et vérifier la validité des concepts de pulsation propre et de résonance.

### VI.2.b.ii. Système avec amortissement

On considère alors l'équation Eq. VII-9 sans le second membre en notant  $\delta = \frac{\Gamma}{2m} > 0$ .

L'équation caractéristique correspondante est donc l'équation suivante :

$$\checkmark \quad r^2 + 2\delta r + \omega_0^2 = 0 \quad \text{Eq. VI-6}$$

Dans ce cas, le discriminant réduit vaut  $\Delta' = \delta^2 - \omega_0^2$ . Il est nécessaire de distinguer trois cas pour connaître les solutions générales de l'équation sans second membre.

- 1<sup>er</sup> cas :  $\Delta' = \delta^2 - \omega_0^2 < 0$

Les deux racines sont donc complexes  $r_{\pm} = -\delta \pm i\sqrt{-\Delta'}$ . La solution générale de l'équation sans second membre peut s'écrire sous la forme suivante  $x_h(t) = e^{-\delta t} \left( B e^{+i\sqrt{-\Delta'}t} + C e^{-i\sqrt{-\Delta'}t} \right)$  avec B et C des valeurs complexes définies par les constantes  $\delta, \omega_0$  et les conditions initiales appliquées à l'oscillateur. Cette solution est une fonction sinusoïdale atténuée dans le temps. Dans ce cas de faible amortissement on parle de régime pseudo-périodique et  $\sqrt{-\Delta'}$  est appelé 'pseudo-période' du système.

- 2<sup>ème</sup> cas :  $\Delta' = \delta^2 - \omega_0^2 = 0$

Il existe donc une racine double  $r_{\pm} = -\delta$ . La solution générale de l'équation sans second membre peut s'écrire sous la forme suivante  $x_h(t) = e^{-\delta t} (Bt + C)$  avec B et C des constantes réelles définies par la constante  $\delta$  et les conditions initiales appliquées à l'oscillateur. Dans ce cas également, l'amplitude des oscillations associées devient rapidement négligeable.

- 3<sup>ème</sup> cas :  $\Delta' = \delta^2 - \omega_0^2 > 0$

Les deux racines sont réelles  $r_{\pm} = -\delta \pm \sqrt{\Delta'} < 0$ . Dans ce cas, la solution générale de l'équation sans second membre peut s'écrire sous la forme suivante  $x_h(t) = e^{-\delta t} (Be^{+\sqrt{\Delta'}t} + Ce^{-\sqrt{\Delta'}t})$  avec B et C des constantes réelles définies par les constantes  $\delta, \omega_0$  et les conditions initiales appliquées à l'oscillateur. Une fois encore cette solution est rapidement atténuée dans le temps. Dans ce dernier cas, on parle du régime aperiodique.

En conclusion, dans les trois cas possibles, les amplitudes du mouvement de la masse associées aux solutions générales de l'équation sans second membre sont atténuées. Ces solutions caractérisent donc le régime transitoire du système avant que s'installe le régime dit permanent qui découle de la solution particulière qui peut s'écrire sous la forme  $x_p(t) = \underline{A}e^{i\omega t}$ , où  $\underline{A}$  est l'amplitude complexe du mouvement de la masse. En introduisant cette solution dans l'équation du système étudié on montre que l'amplitude complexe s'écrit sous la forme suivante  $\underline{A} = \frac{F_0}{m(\omega_0^2 - \omega^2 + 2i\delta\omega)}$ . Dans ce cas, les pulsations qui permettent de

mettre le système en résonance, i.e. qui sont solutions du polynôme  $\omega_0^2 - \omega^2 + 2i\delta\omega = 0$ , sont complexes. Par extension, on dit alors que le système entre en résonance quand l'amplitude réelle du mouvement de la masse  $A = \frac{F_0}{m\sqrt{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4\delta^2\omega^2}}$  présente une amplification

pour des pulsations d'excitations proches de la pulsation propre du système. L'amplitude réelle A est représentée en fonction de la pulsation  $\omega$  sur la Figure VI-4.

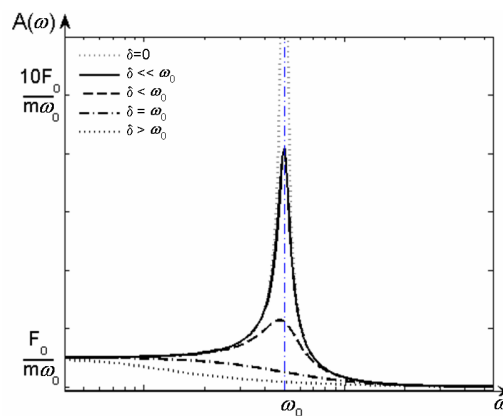


Figure VI-4: Valeur de l'amplitude du mouvement de la masse m en fonction de la pulsation  $\omega$  pour différentes valeurs de coefficient d'amortissement  $\delta$ .

Dans le cas où l'amortissement est faible (régime pseudo-périodique), on remarque que l'amplitude peut devenir grande mais qu'elle reste bornée. Dans le cas du régime

critique en revanche, on remarque qu'il n'existe plus de pic d'amplification de l'amplitude, et donc de résonance. C'est également le cas dans le régime aperiodique.

Dans le cas de l'oscillateur avec amortissement, pour exciter le système à la résonance, i.e. au pôle, il est nécessaire d'appliquer une force avec une pulsation complexe, ce qui implique que l'amplitude de la force appliquée varie dans le temps. Nous ne nous intéresserons pas à ce type d'excitateur dans cette partie dédiée à l'oscillateur mécanique.

Cet exemple de l'oscillateur mécanique, nous a permis de mieux appréhender les phénomènes de modes propres d'un système physique et sa mise en résonance quand la pulsation de l'excitateur est égale à la pulsation d'un des modes propres du système. Nous allons maintenant nous intéresser plus précisément aux résonances électromagnétiques qui peuvent être générées entre deux, puis trois milieux séparés par des interfaces planes. On cherchera à faire l'étude du régime stationnaire de ces systèmes en régime harmonique, les fréquences choisies seront donc purement réelles. Dans le cas de système où l'oscillateur est un champ électromagnétique, le problème n'est plus unidimensionnel. Il faut alors définir les caractéristiques temporelles (pulsation) et spatiales (vecteur d'onde) des modes propres du système. Pour mettre en résonance le système, il sera nécessaire que les caractéristiques temporelles et spatiales de l'excitateur coïncident avec celles du mode. Nous commencerons donc par calculer et tracer les courbes de dispersion des modes propres des systèmes étudiés théoriquement. Le premier système étudié sera une interface unique. Ce système entièrement traité de manière analytique permet de bien décrire la méthodologie utilisée pour le système à deux interfaces qui sera traité par la suite. Après cette étude théorique, nous observerons expérimentalement quels sont les modes résonants dans différents systèmes proches du film mince étudié théoriquement.

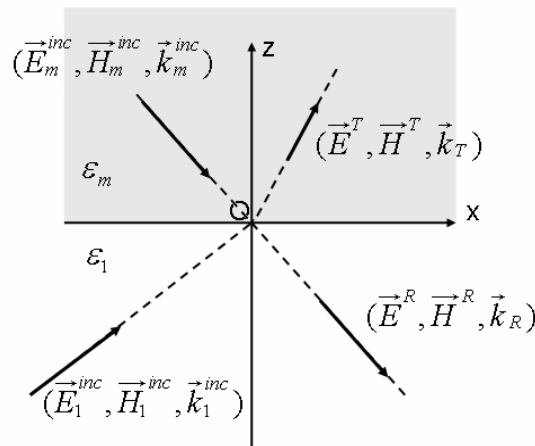
# VII. Etude théorique des modes propres d'interfaces

## métal/diélectrique

### VII.1. L'interface unique

#### VII.1.a. Position du problème

On considère donc maintenant le passage d'une onde électromagnétique telle que définie dans la 1<sup>ère</sup> partie, paragraphe I.2.a d'un milieu 1 (air) vers un milieu 2 (métal). Les deux milieux homogènes semi-infinis sont séparés par une interface parfaitement plane. Ce système physique est illustré sur la Figure VII-1, l'interface est le plan Oxy en  $z=0$ .



**Figure VII-1: Schéma de l'interaction d'une onde avec une interface air-métal**

A l'aide des équations de Maxwell et des relations de continuité, il est possible de traduire mathématiquement le problème afin de le résoudre. On écrit les champs électriques  $\vec{E}$  et magnétiques  $\vec{H}$  dans chacun des milieux et on applique les conditions aux limites pour obtenir un système avec autant d'équations que d'inconnues, sachant que les différents champs incidents sont imposés. La convention choisie pour l'écriture des différents champs est celle décrite dans le chapitre I.2.a. La constante diélectrique des milieux métalliques considérés est donc calculée de la manière suivante  $\epsilon_m = (n + i\kappa)^2$ .

- 1<sup>er</sup> cas : Cas de l'onde dite 'TE' ou 's'

Dans ce cas, seule la composante sur Oy du vecteur  $\vec{E}$  dans chacun des milieux est non nulle,  $E_y = \|\vec{E}\| \neq 0$ . La notation des champs a été choisie pour faciliter le travail analytique qui suivra, mais le problème est défini comme dans [Yeh88]. D'après la condition aux limites pour les champs électriques tangentiels (Cond.2) exprimé en  $z = 0$  il vient de façon évidente que  $E_1^{inc} + E^R = E_m^{inc} + E^T$ . On dérive ensuite grâce aux équations de Maxwell



(Eq. I-1 en polarisation 's') les différents champs électriques pour calculer les champs magnétiques correspondants.

$$\checkmark \quad \vec{H}_1^{inc} = \frac{1}{\mu\omega} (-k_{z1}E_1^{inc}, 0, k_xE_1^{inc})$$

$$\checkmark \quad \vec{H}_m^{inc} = \frac{1}{\mu\omega} (k_{zm}E_m^{inc}, 0, k_xE_m^{inc})$$

$$\checkmark \quad \vec{H}^R = \frac{1}{\mu\omega} (k_{z1}E^R, 0, k_xE^R)$$

$$\checkmark \quad \vec{H}^T = \frac{1}{\mu\omega} (-k_{zm}E^T, 0, k_xE^T)$$

En appliquant la condition aux limites pour les champs magnétiques tangentiels (Cond.4) en  $z = 0$  on obtient l'égalité suivante  $-k_{z1}E_1^{inc} + k_{z1}E^R = k_{zm}E_m^{inc} - k_{zm}E^T$ . On exprime alors les amplitudes des champs transmis et réfléchis en fonctions des champs incidents :

$$\begin{cases} E^R - E^T = -E_1^{inc} + E_m^{inc} \\ k_{z1}E^R + k_{zm}E^T = k_{z1}E_1^{inc} + k_{zm}E_m^{inc} \end{cases}$$

Ce système d'équation peut également se mettre sous la forme matricielle suivante :

$$\begin{pmatrix} 1 & -1 \\ k_{z1} & k_{zm} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E^R \\ E^T \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -1 & 1 \\ k_{z1} & k_{zm} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_1^{inc} \\ E_m^{inc} \end{pmatrix}$$

Pour revenir au formalisme précédent  $\Theta S = E$ , on écrit alors

$$\frac{1}{k_{z1} + k_{zm}} \begin{pmatrix} k_{z1} - k_{zm} & 2k_{zm} \\ 2k_{z1} & k_{zm} - k_{z1} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E^R \\ E^T \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_1^{inc} \\ E_m^{inc} \end{pmatrix}$$

Dans ce cas, les données entrantes du système sont les ondes qui arrivent sur l'interface  $E = (E_1^{inc} \quad E_m^{inc})$  et les données sortantes  $S = (E^R \quad E^T)$  les ondes s'éloignant de l'interface. Enfin, l'opérateur  $\Theta$  est une matrice 2x2. Comme dans le cas mécanique, les modes propres de ce système sont donnés par les solutions du problème homogène [Boardmann82], soit

$$\frac{1}{k_{z1} + k_{zm}} \begin{pmatrix} k_{z1} - k_{zm} & 2k_{zm} \\ 2k_{z1} & k_{zm} - k_{z1} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E^R \\ E^T \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix}$$

En pratique, une fois la matrice diagonalisée, on sait que les solutions non-triviales du problème homogène sont trouvées si les valeurs propres du système sont nulles. Les modes propres du système sont donc définis par l'annulation des valeurs propres de l'opérateur  $\Theta$ . Cette condition implique que les solutions non-triviales ( $S \neq (0 \ 0)$ ) sont déterminées par l'équation  $\det(\Theta) = 0$ . Dans le cas de l'interface unique en polarisation 's' les modes propres sont donc définis par l'équation suivante :

$$\det \left( \frac{1}{k_{z1} + k_{zm}} \begin{pmatrix} k_{zm} - k_{z1} & 2k_{z1} \\ 2k_{zm} & k_{z1} - k_{zm} \end{pmatrix} \right) = -(k_{z1} + k_{zm}) = 0$$

qui se simplifie finalement pour donner l'équation de dispersion Eq. VII-1 d'une interface unique en polarisation 's', condition que le mode excitateur doit remplir pour mettre en résonance le système :

$$\checkmark \quad k_{z1} + k_{zm} = 0 \quad \text{Eq. VII-1}$$

- 2<sup>ème</sup> cas : Cas de l'onde dite 'TM' ou 'p'

Dans ce cas, le champ électrique est contenu dans le plan d'incidence  $\vec{E} = (E_x, 0, E_z)$ . On préférera alors travailler sur la composante non nulle du champ magnétique, la composante selon l'axe Oy dans chacun des milieux  $H_y = \|\vec{H}\| \neq 0$ . De la même façon qu'en polarisation 's', on traduit mathématiquement le problème avec les équations de Maxwell et les conditions aux limites. On obtient alors la forme matricielle suivante :

$$\begin{pmatrix} 1 & -1 \\ \frac{k_{z1}}{\epsilon_1} & \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} H^R \\ H^T \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -1 & 1 \\ \frac{k_{z1}}{\epsilon_1} & \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} H_1^{inc} \\ H_m^{inc} \end{pmatrix}$$

Ce qui implique que le problème homogène peut s'écrire de la manière suivante en posant  $H_1^{inc} = 0$  et  $H_m^{inc} = 0$  :

$$\frac{1}{k_{z1} + k_{zm}} \begin{pmatrix} \frac{k_{z1} - k_{zm}}{\epsilon_1} & \frac{2k_{zm}}{\epsilon_m} \\ 2\frac{k_{z1}}{\epsilon_1} & \frac{k_{zm} - k_{z1}}{\epsilon_m} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} H^R \\ H^T \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix}$$

Enfin, les solutions non triviales ( $S \neq (0 \ 0)$ ) sont données par l'équation suivante :

$$\det \left( \frac{1}{\begin{pmatrix} k_{z1} + k_{zm} \\ \varepsilon_1 & \varepsilon_m \end{pmatrix}} \begin{pmatrix} \frac{k_{z1} - k_{zm}}{\varepsilon_1} & 2 \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \\ 2 \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} & \frac{k_{zm} - k_{z1}}{\varepsilon_m} \end{pmatrix} \right) = - \left( \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \right) = 0$$

La condition de résonance du système pour les ondes en polarisation 'p' est alors :

$$\checkmark \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} = 0 \quad \text{Eq. VII-2}$$

Avant de chercher quelles sont les solutions des équations de dispersion des modes d'interfaces en polarisation 's' et 'p', nous allons rapidement présenter les coefficients de Fresnel de réflexion et de transmission pour une interface unique.

### VII.1.b. Coefficients de Fresnel d'une interface unique

Ces coefficients qui se déduisent du travail précédent présentent deux avantages : ils faciliteront le travail analytique et permettront également de montrer explicitement quelle est la condition qui implique un champ réfléchi nul, définissant ainsi l'angle de Brewster. Pour calculer ces coefficients, on anticipe la mise à zéro du champ incident dans le milieu métallique et on considère uniquement l'onde incidente dans le milieu diélectrique. On définit alors les coefficients de Fresnel de réflexion et de transmission, respectivement  $r$  et  $t$  de la façon suivante  $E^R = rE_1^{inc}$  et  $E^T = tE_1^{inc}$ .

- 1<sup>er</sup> cas : Cas de l'onde dite 'TE' ou 's'

Dans ce cas, on trouve alors les expressions suivantes pour calculer les valeurs des coefficients de Fresnel:

$$r_s = \frac{k_{z1} - k_{zm}}{k_{z1} + k_{zm}} = \frac{k_1 \cos(\theta_i) - k_0 (n_m^2 - n_1^2 \sin^2(\theta_i))^{1/2}}{k_1 \cos(\theta_i) + k_0 (n_m^2 - n_1^2 \sin^2(\theta_i))^{1/2}}$$

et

$$t_s = \frac{2k_{z1}}{k_{z1} + k_{zm}} = \frac{2k_1 \cos(\theta_i)}{k_1 \cos(\theta_i) + k_0 (n_m^2 - n_1^2 \sin^2(\theta_i))^{1/2}}$$

On remarque alors que le dénominateur des coefficients de Fresnel de réflexion et de transmission est en fait égal à l'équation de dispersion (Eq. VII-1). On comprend alors que si l'excitateur satisfait l'équation de dispersion,  $r_s$  et  $t_s$  tendent vers des valeurs arbitrairement grandes. De plus, si  $t_s$  peut s'annuler pour une incidence rasante uniquement, on observe que la condition pour que  $r_s$  s'annule ne diffère que d'un signe de l'équation de dispersion.

▪ 2<sup>ème</sup> cas : Cas de l'onde dite 'TM' ou 'p'

Dans ce cas  $\vec{E}_0^{inc} = (E_{0x}^{inc}, 0, E_{0z}^{inc})$ , le champ électrique est contenu dans le plan d'incidence. On travaille alors sur le champ magnétique. On obtient les coefficients de Fresnel suivant :

$$r_p = \frac{\frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} - \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m}}{\frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m}} = \frac{k_0 n_m \cos(\theta_i) - k_0 n_1 \left(1 - \frac{n_1^2}{n_m^2} \sin^2(\theta_i)\right)^{1/2}}{k_0 n_m \cos(\theta_i) + k_0 n_1 \left(1 - \frac{n_1^2}{n_m^2} \sin^2(\theta_i)\right)^{1/2}}$$

et

$$t_p = \frac{2 \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1}}{\frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m}} = \frac{2 k_0 n_1 \cos(\theta_i)}{k_0 n_m \cos(\theta_i) + k_0 n_1 \left(1 - \frac{n_1^2}{n_m^2} \sin^2(\theta_i)\right)^{1/2}}.$$

A l'incidence normale, on remarque que les coefficients de réflexion et de transmission sont respectivement égaux pour les polarisations 's' et 'p', ce qui est essentiel pour respecter la symétrie de rotation d'un tel système.

On remarque qu'en polarisation 'p', comme en polarisation 's', le dénominateur de  $r_p$  et  $t_p$  est à nouveau égal à l'équation de dispersion définie précédemment. De plus, la condition d'annulation de  $r_p$  ne diffère toujours que d'un signe de l'équation de dispersion.

D'une manière générale, pour les deux polarisations, on peut donc conclure que si le champ exciteur remplit la condition de l'équation de dispersion, la valeur des coefficients de Fresnel devient infinie. Cette remarque est en accord avec la définition de la résonance donnée dans le cas de l'excitateur mécanique. Dans le cas de l'interface unique et des systèmes plus complexes, les zéros des coefficients de réflexion seront qualifiés 'd'angles de Brewster généralisés' en référence à l'angle de Brewster pour lequel la réflexion d'une OPPM en polarisation 'p' s'annule à la surface d'un prisme [Born&Wolf80].

Nous allons maintenant nous intéresser aux zéros et aux pôles de  $r$  et  $t$  dans chacune des polarisations. L'étude de ces coefficients est d'une grande richesse de cas d'étude en fonction des différentes permittivités (réelles ou complexes) des deux milieux. Je n'étudierais donc pas tous les cas possibles dans ce manuscrit. Nous allons exclusivement nous intéresser à des interfaces métal/diélectrique. On prendra dans le cas suivant l'air  $\varepsilon_d = 1$  pour le milieu diélectrique et pour le matériau un métal quelconque  $\varepsilon_m = (n + i\kappa)^2$ . Sauf pour faciliter certains résonnements, nous ne nous limiterons pas à la gamme de longueur d'onde où  $0 < n \ll \kappa$ . Le modèle utilisé pour les valeurs d'indice du métal sera le modèle réel pour toutes les longueurs d'onde considérées (de 220nm à 1880nm). Les vecteurs d'onde seront donc le plus souvent complexes. D'une façon générale, on écrira alors que  $k = k' + ik''$  avec  $k'$  et  $k''$  des quantités réelles.

### VII.1.c. Angles de Brewster

Les calculs présentés dans ce paragraphe seront peu détaillés. Ils permettent de connaître les ondes qui présentent un angle de Brewster, i.e. les ondes pour lesquelles le coefficient de réflexion de Fresnel est nul. Ces calculs serviront essentiellement de comparaison aux calculs effectués dans le paragraphe VII.1.d pour les modes d'interfaces qui nous concernent plus particulièrement. La comparaison faite dans le cas de l'interface unique, si elle est triviale, permettra de mieux comprendre les phénomènes mis en jeu dans le cas du film mince.

On sait que pour notre système et dans notre référentiel, la valeur du  $k_x$  est conservée. On va donc se baser sur cette variable, en cherchant les valeurs pour lesquelles elle résout la condition d'annulation du coefficient de réflexion. On exprime ensuite en fonction de cette composante les valeurs des  $k_z$  dans chacun des milieux en utilisant l'égalité suivante déduite de l'équation de propagation dans les deux milieux

$$\checkmark \quad \varepsilon_i \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 = k_x^2 + k_{zi}^2 \quad , \quad i \in [1, m] \quad \text{Eq. VII-3}$$

- 1<sup>er</sup> cas : Cas de l'onde dite 'TE' ou 's'

Dans ce cas, on obtient un coefficient de réflexion nul à la condition suivante

$$\checkmark \quad k_{z1} = k_{zm} \Leftrightarrow \left( \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \varepsilon_1 - k_x^2 \right)^{1/2} = \left( \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \varepsilon_m - k_x^2 \right)^{1/2} \Rightarrow \varepsilon_1 = \varepsilon_m \quad \text{Eq. VII-4}$$

Il ne peut donc pas y avoir d'angle de Brewster en polarisation 's'. L'affirmation contraire impliquerait que les deux matériaux ont des permittivités identiques et il n'existerait donc pas d'interface.

- 2<sup>ème</sup> cas : Cas de l'onde dite 'TM' ou 'p'

Dans le cas où le champ électrique est contenu dans le plan d'incidence, il existe un angle de Brewster quand

$$\checkmark \quad \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} = \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \quad \text{Eq. VII-5}$$

On exprime de façon analytique les valeurs de la composante  $k_x$  qui satisfont cette équation

$$\checkmark \quad k_x = \pm \frac{\omega}{c} \left( \frac{\varepsilon_m \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d} \right)^{1/2} = \pm (k_x' + i k_x'') \quad \text{Eq. VII-6}$$

Le lecteur averti aura bien sûr reconnu l'expression du vecteur d'onde des PPS d'une interface unique. Il est cependant contradictoire de dire que le système entre en résonance et que l'onde réfléchie, qui représente l'une de ses sorties s'annule (l'amplitude des valeurs de

sortie doit diverger d'après notre définition). Nous allons donc tâcher d'expliquer cette similitude en calculant les modes résonants de cette même interface. Il est important de noter que les valeurs des composantes des vecteurs d'onde perpendiculaires à l'interface sont liées par l'équation Eq. VII-5.

#### VII.1.d. Modes d'interfaces résonants

On cherche maintenant quelles sont les ondes qui permettent une mise en résonance de l'interface. Ces ondes sont données par les solutions de l'équation de dispersion.

- 1<sup>er</sup> cas : Cas de l'onde dite 'TE' ou 's'

Comme dans le paragraphe précédent, la condition de résonance en polarisation 's' implique que les deux matériaux aient la même permittivité, il n'existe alors pas d'interface.

$$\checkmark \quad k_{z1} = -k_{zm} \Leftrightarrow \left( \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \varepsilon_1 - k_x^2 \right)^{1/2} = - \left( \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \varepsilon_m - k_x^2 \right)^{1/2} \Rightarrow \varepsilon_1 = \varepsilon_m \quad \text{Eq. VII-7}$$

Il n'existe donc pas d'onde résonante à l'interface entre un métal et un matériau diélectrique en polarisation 's'. Regardons maintenant le cas de la polarisation 'p' qui nous intéresse tout particulièrement.

- 2<sup>ème</sup> cas : Cas de l'onde dite 'TM' ou 'p'

Dans ce cas, l'équation de dispersion impose la relation suivante entre les composantes  $k_z$  du champ électromagnétique :

$$\checkmark \quad \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} = - \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \quad \text{Eq. VII-8}$$

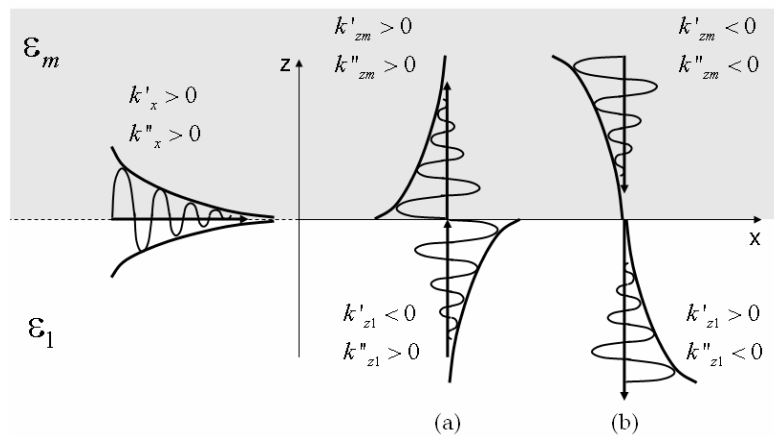
Comme nous l'avons déjà fait remarquer, cette condition ne diffère que d'un signe de la condition donnée pour obtenir un angle de Brewster (Eq. VII-5). La méthode de résolution de l'équation est la même et les composantes  $k_x$  solutions sont en fait identiques pour l'angle de Brewster et les modes résonants. Seules les composantes  $k_z$  vont être différentes. On exprime donc de façon analytique la valeur de la composante  $k_x$  résonante qui satisfait l'équation de dispersion

$$\checkmark \quad k_x = k_{sp}^{m/d} = \pm \frac{\omega}{c} \left( \frac{\varepsilon_m \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d} \right)^{1/2} = \pm (k_x' + ik_x'') \quad \text{Eq. VII-9}$$

On remarque tout d'abord que sous la racine la quantité est complexe, l'onde qui satisfait cette condition est en fait une onde plane inhomogène dans le cas le plus général. On définit alors respectivement  $k_x'$  et  $k_x''$  les parties réelles et imaginaires de  $k_x$ . Le mode solution est donc une onde propagative dont l'amplitude varie au cours de sa propagation

suivant l'axe des  $x$ . Il existe deux solutions mathématiques à cette expression, égales au signe près. On choisira ici la détermination qui permet une propagation de l'onde suivant les  $x$  positifs. Dans ce cas, la composante  $k_x$  de l'onde qui satisfait les équations Eq. VII-8 et Eq. VII-9 a une partie réelle positive, supérieure à  $\frac{\omega}{c}\sqrt{\varepsilon_d}$  dans la gamme de longueur d'onde où  $0 < n \ll \kappa$ . Autrement dit, ces modes se trouvent en dessous de la droite de lumière dans le diagramme de rayonnement associé au milieu diélectrique considéré. Ils ne pourront donc pas être directement excités par des ondes incidentes en espace libre. Il en va de même pour trouver un angle de Brewster dans cette gamme de longueur d'onde. Dans le cadre du modèle défini, la partie imaginaire est également strictement positive, ce qui implique une atténuation de l'onde lors de sa propagation dans le sens des  $x$  positifs. Ce choix de détermination ne modifie en rien la valeur des composantes suivant  $z$  dans les deux autres milieux, puisque les deux déterminations possibles de  $k_x$  ont le même carré. Il faut maintenant déterminer la valeur de la composante normale  $k_z$  dans l'un des milieux adjacents à l'interface via l'Eq. VII-3. Il existe alors potentiellement 4 structures distinctes en fonction des déterminations choisies pour chacune des valeurs de  $k_z$  dans les différents milieux. Mais la relation de dispersion Eq. VII-8 fige la détermination dans le second milieu. En prenant le parti volontaire de ne pas expliciter le mode de détermination (détermination sur la partie réelle ou imaginaire), on a dans le premier milieu  $k_{z1}^A$  et  $k_{z1}^B$ , avec  $k_{z1}^B = -k_{z1}^A$ . On exprime alors  $k_{zm}^a = -\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_1}k_{z1}^A$  et  $k_{zm}^b = -\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_1}k_{z1}^B$ . Les lettres minuscules indiquant que la détermination est imposée par l'une ou l'autre des déterminations choisies pour calculer la première valeur de  $k_z$ . Dans le cas de l'interface unique, la 'simplicité' de l'équation implique que  $k_{zm}^b = -k_{zm}^a$ , mais ce n'est pas nécessairement le cas. Les ondes solutions de l'équation de dispersion sont alors représentées par les triplets suivant  $(k_x, k_{z1}^A, k_{zm}^a)$  et  $(k_x, k_{z1}^B, k_{zm}^b)$  (on omettra volontairement et systématiquement pour les différents systèmes les ensembles de solutions donnés pour  $-k_x$ ). En choisissant la même détermination que précédemment dans le cas de la résonance qui donne l'angle de Brewster,  $k_x$  et par conséquent  $k_{z1}^A$  et  $k_{z1}^B$  sont rigoureusement identiques. Par contre, le calcul de  $k_{zm}$  n'est pas effectué avec la même équation. Dans le cas simple de l'interface unique, les triplets solutions pour obtenir un angle de Brewster sont les suivants  $(k_x, k_{z1}^A, -k_{zm}^a)$  et  $(k_x, k_{z1}^B, -k_{zm}^b)$  (en rapport à la notation définie par l'équation de dispersion). On remarque alors que les composantes des vecteurs d'onde sont les mêmes en valeur absolue, mais algébriquement elles n'ont pas les mêmes sens de propagation et d'atténuation perpendiculairement à l'interface dans l'un des milieux. Nous verrons que dans le cas du film mince, il existe des similitudes semblables entre les ondes qui permettent de mettre en résonance le film et les ondes qui impliquent un coefficient de réflexion nul.

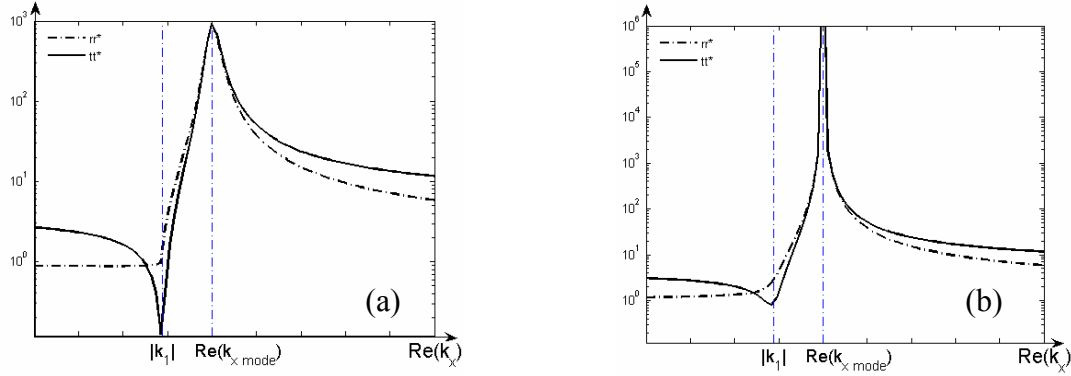
Avant de conclure cette étude, nous allons représenter les différentes structures des modes résonants d'interfaces, définies à partir de la valeur de  $k_z$  dans le milieu diélectrique 'air'. Il existe alors deux solutions représentées sur la Figure VII-2 dans la gamme de longueur d'onde où  $0 < n \ll \kappa$ . La première se propage et s'amplifie vers les  $z$  positifs et la seconde vers les  $z$  négatifs. A ces deux solutions correspondent des structures de champ dans le métal, respectivement propagatives et amorties vers les  $z$  positifs ou négatifs.



**Figure VII-2: Représentation des structures de modes résonants d'une interface métal/air**

On définit ainsi deux structures de modes, notées (a)&(b) sur la Figure VII-2. Ces modes ont le même comportement suivant l'axe des  $x$ , mais des comportements différents suivant l'axe des  $z$ . Les structures présentées sont calculées pour la gamme de longueur d'onde où  $0 < n \ll \kappa$ . Dans le cas du métal réel, nous verrons que les structures des modes résonants ne sont pas similaires sur toute la plage de longueur d'onde considérée par notre modèle. Les possibilités d'excitation de ces modes résonants seront discutées dans le chapitre VIII. Leur excitation implique des coefficients de Fresnel de transmission et de réflexion dont les valeurs seraient arbitrairement grandes. La Figure VII-3 a&b compare les valeurs des modules des coefficient de Fresnel pour des ondes incidentes dont la composante  $k_x$  est purement réelle (Figure VII-3-a), ou qui ont de façon hypothétique une composante  $k_x$  réelle à laquelle on ajoute la partie imaginaire exacte du mode (Figure VII-3-b).





**Figure VII-3 a&b: Module au carré des coefficients de Fresnel r et t d'une interface Ag/air. Sur la figure (a)  $k_x$  est un réel pur, sur la figure (b), on ajoute à  $k_x$  une partie imaginaire telle que  $Im(k_x) = Im(k_{mode})$ .**

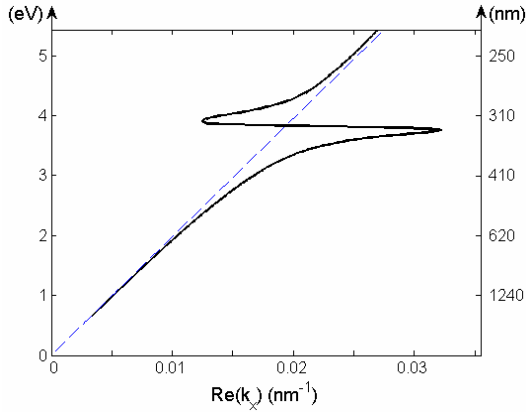
Sur la Figure VII-3, on remarque l'amplification respective de chacun des coefficients à la résonance. Cependant seul le vecteur d'onde complet du mode permet d'obtenir une résonance telle qu'elle a été définie, avec une valeur d'amplitude qui tend vers une valeur infinie. Dans le cas où le vecteur d'onde est réel, le système entre bien en résonance mais les amplitudes de r et t restent bornées. Pour résumer, on dira donc que seules les solutions exactes de l'équation de dispersion peuvent permettre une excitation aux pôles du système.

Les modes qui confinent le champ électromagnétique au plus près de l'interface, i.e. les modes dont la structure suivant l'axe z est similaire à la structure notée (a) sur la Figure VII-2 sont qualifiés de modes plasmon-polariton de surface guidés ou 'bound' [Burke86],[Dionne05]. Un mode dont la structure est semblable à celle de la Figure VII-2(b) n'est pas guidé par l'interface.

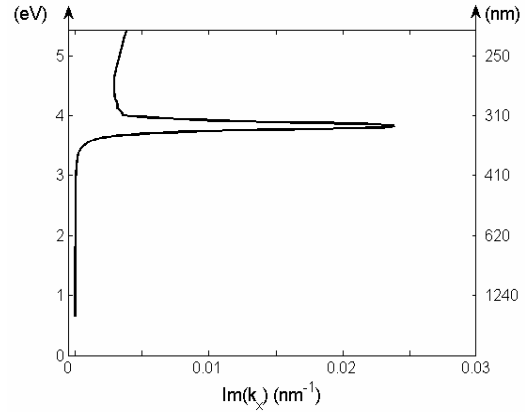
Nous allons maintenant tracer les courbes de dispersion pour la partie réelle et imaginaire du vecteur d'onde suivant les axes x et z dans le cas d'une interface Argent/Air. Les courbes de dispersion représentent l'ensemble des triplets solutions en fonction de la pulsation  $\omega$  du champ électromagnétique. Pour exciter au pôle un mode résonant, il faut que l'onde incidente coïncide en impulsion (vecteur d'onde) et en énergie ( $\propto \omega$  en eV) aux différentes solutions données dans la Figure VII-4 et Figure VII-5. On en déduit ensuite les valeurs des composantes réelles et imaginaires des vecteurs d'ondes suivant l'axe z dans chacun des milieux adjacents (Figure VII-7&Figure VII-8). Le calcul des différentes courbes est effectué à partir des valeurs d'indice données dans [Johnson&Christy72], avec  $\epsilon_m = (n + i\kappa)^2$ . On suppose que les milieux diélectriques considérés ne présentent aucune dispersion ( $\epsilon_{air} = 1$  et  $\epsilon_{verre} = (1.458)^2$ ). Pour calculer les valeurs de  $k_z$  et présenter les courbes de dispersion, nous avons choisi la composante dans le milieu diélectrique telle qu'elle permette d'obtenir le mode présenté sur la Figure VII-2(a). Pour le mode présenté sur la Figure VII-2(b), les valeurs des composantes  $k_z$  qui sont de signe opposés ne seront pas représentées.

### VII.1.e. Courbe de dispersion de l'interface unique Ag/air

On présente sur la Figure VII-4 et Figure VII-5 les courbes de dispersion de la partie réelle et imaginaire des modes propres de l'interface Ag/air.



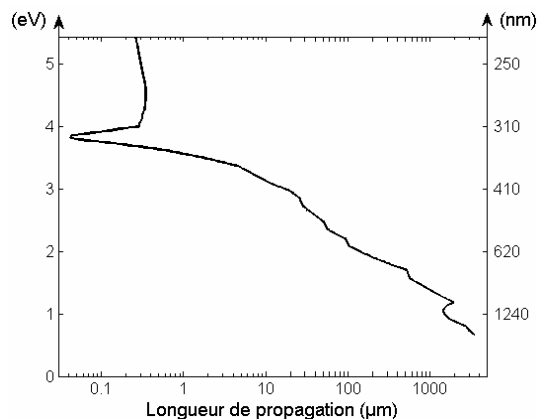
**Figure VII-4: Courbe de dispersion de la partie réelle du vecteur d'onde  $k_x$  des modes propres d'une interface Ag/air**



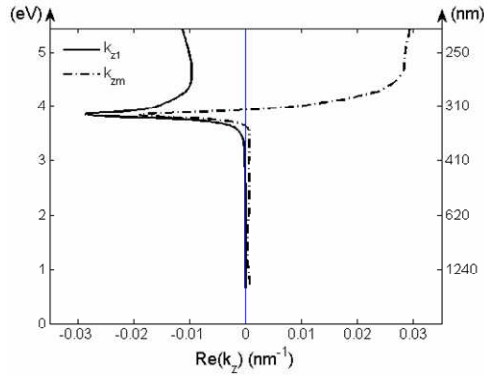
**Figure VII-5: Courbe de dispersion de la partie imaginaire du vecteur d'onde  $k_x$  des modes propres d'une interface Ag/air**

On remarque la partie non-radiative de la courbe de dispersion, caractéristique des PPS. Le passage au dessus de la droite de lumière s'effectue à une longueur d'onde comprise entre la longueur d'onde du plasmon de surface ( $\sim 330\text{nm}$ ) et celle de la résonance plasma ( $\sim 316\text{nm}$ ). Aux environs de la résonance plasma ( $\sim 316\text{nm}$ ), on remarque que l'absorption augmente très fortement. La courbe de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  est associée à la longueur de propagation du mode. La partie imaginaire de la composante  $k_x$  du vecteur d'onde permet de calculer la longueur de propagation  $L$  pour laquelle l'intensité du champ électromagnétique associé au mode sera divisée par un facteur  $e^2$ ,  $L = \frac{1}{k_x''}$ . Cette courbe

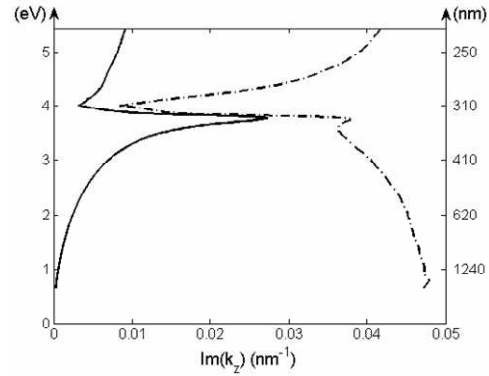
(Figure VII-6) permet d'estimer les distances que peuvent parcourir les PPS se propageant aux interfaces métalliques. Ces distances varient très fortement en fonction de la longueur d'onde, de moins d'un micron pour les ondes UV jusqu'à plusieurs 100<sup>aine</sup> de microns dans le proche IR.



**Figure VII-6 : Longueur de propagation des modes propres d'une interface Ag/Air**

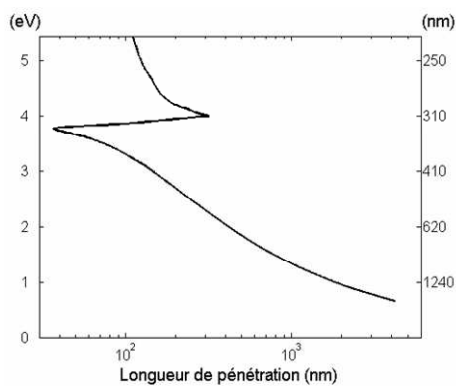


**Figure VII-7: Courbes de dispersion de la composante réelle du vecteur d'onde  $k_z$  des modes propres d'une interface Ag/air dans chacun des milieux adjacents**

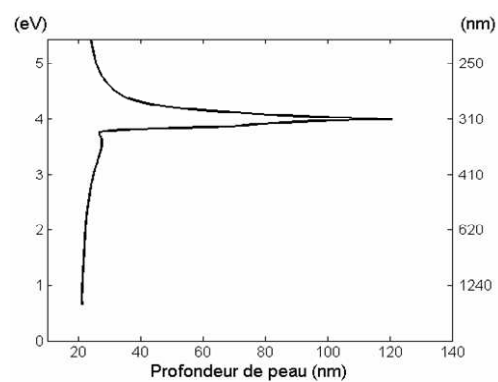


**Figure VII-8: Courbes de dispersion de la composante imaginaire du vecteur d'onde  $k_z$  des modes propres d'une interface Ag/air dans chacun des milieux adjacents**

Dans la partie diélectrique (courbes continues) le mode a bien la structure décrit sur la Figure VII-2-a pour toutes les longueurs d'onde. Comme dans le cas de l'onde évanescente excitée en réflexion totale interne à la surface d'un prisme, la partie imaginaire de l'onde dans l'air permet d'estimer la longueur de pénétration dans le milieu diélectrique perpendiculairement à la surface  $d_p = \frac{1}{k_{z1}''}$  (Figure VII-9). Dans la partie métal (courbes discontinues), on parlera de la profondeur de peau mais la définition reste la même  $d_p = \frac{1}{k_{zm}''}$  (Figure VII-10). On remarque toutefois que la partie réelle de la composante  $k_z$  change de signe pour les longueurs d'onde situées entre 316 et 342nm. A ces deux longueurs d'onde, le PPS concerné a une composante tangentielle purement évanescente. Entre ces longueurs d'onde, l'oscillation du champ s'effectue vers l'interface, mais la structure confinée du mode n'est pas remise en cause, les parties imaginaires conservent le même signe.



**Figure VII-9: Longueur de pénétration des modes propres d'une interface Ag/air dans l'air**



**Figure VII-10: Profondeur de peau des modes propres d'une interface Ag/air**

En fonction des différentes interfaces métal/diélectrique étudiées, les valeurs de  $\omega_p$  et  $\omega_{ps}$ , ainsi que l'amplitude respective des résonances peuvent varier fortement. Ayant le souci d'appuyer notre étude des PPS avec des réalisations expérimentales, nous avons recherché des métaux pour lesquels les modes non radiatifs (couple  $(k_x, \omega)$  à 'droite' de la courbe de lumière) et les différentes résonances (plasma et plasmon de surface) sont inclus dans la gamme de longueur d'onde visible. L'or et l'argent sont deux métaux courants qui répondent à ce critère. Notre travail s'est concentré sur l'argent pour la partie théorique. Ce métal présente des résonances plus marquées (donc plus démonstratives) que l'or. Cependant, pour la partie expérimentale, nous avons choisi de travailler avec l'or pour éviter les soucis de sulfuration et d'oxydation spontanée à l'air libre rencontrés avec l'argent.

Dans ce paragraphe, nous avons donc traité le cas des modes de surface résonants d'une interface unique Ag/Air de manière exacte en régime harmonique. Après cette 1<sup>ère</sup> partie théorique, nous allons maintenant introduire une seconde interface, définissant cette fois un film métallique, déposé ou non sur un substrat. Nous tenterons de reproduire tout le raisonnement précédent. Dans un premier temps on définira l'équation de dispersion d'un tel système. Puis nous chercherons toutes les solutions qui permettent d'annuler cette équation. Nous inclurons donc dans notre étude les modes qui ne sont pas guidés par le film métallique. Il s'agira ensuite de définir quels sont les modes résonants en fonction de la configuration expérimentale.

Nous continuerons de ne pas nous limiter au cas de faible absorption, modélisé par le modèle du gaz d'électron libre. Nous nous intéresserons cette fois uniquement à la polarisation 'p' qui permet de générer des modes propres résonants dans cette configuration. Nous considérerons dans un premier temps un système où les deux interfaces sont découplées, i.e. où les deux interfaces sont séparées par une grande distance par rapport à la profondeur de peau des PPS des deux interfaces. Puis dans un deuxième temps, nous observerons ce qui se passe dans le cas de films métalliques moins épais, symétrique d'abord et asymétrique ensuite.

## VII.2. Le film

### VII.2.a. Position du problème

Nous considérons maintenant un film mince métallique défini par deux interfaces parfaitement planes. Le film est encadré par 2 milieux diélectriques homogènes semi-infinis. Le système est schématisé sur la Figure VII-11.

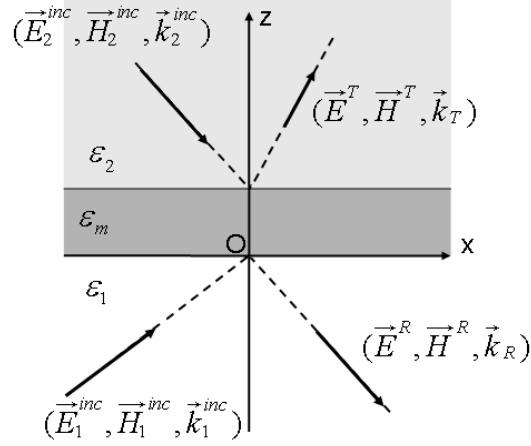


Figure VII-11: Schéma de l'interaction d'une onde EM avec un film mince métallique.

Comme dans le cas de l'interface unique, on peut écrire mathématiquement le problème à l'aide des équations de Maxwell et des équations de continuité. On obtient alors le système matriciel suivant :

$$\begin{pmatrix} \left( \frac{k_{z1} + k_{zm}}{\varepsilon_1} \right) e^{ik_{zm}d} & \left( \frac{k_{z2} - k_{zm}}{\varepsilon_2} \right) e^{-ik_{z2}d} \\ \left( \frac{k_{z1} - k_{zm}}{\varepsilon_1} \right) e^{-ik_{zm}d} & \left( \frac{k_{z2} + k_{zm}}{\varepsilon_2} \right) e^{-ik_{z2}d} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} H_1^{inc} \\ H_2^{inc} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \left( \frac{k_{z1} - k_{zm}}{\varepsilon_1} \right) e^{ik_{zm}d} & \left( \frac{k_{z2} + k_{zm}}{\varepsilon_2} \right) e^{ik_{z2}d} \\ \left( \frac{k_{z1} + k_{zm}}{\varepsilon_1} \right) e^{-ik_{zm}d} & \left( \frac{k_{z2} - k_{zm}}{\varepsilon_2} \right) e^{ik_{z2}d} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} H^R \\ H^T \end{pmatrix}$$

De la même façon que dans le cas de l'interface unique on exprime alors le problème sous la forme  $\Theta S = E$  et on cherche les solutions du problème homogène  $\Theta S = 0$ . 'After few steps of algebraic manipulations' [Yeh88], on obtient l'équation de dispersion qui permet de calculer les modes résonants du film mince considéré. Comme dans le cas de l'interface unique, on recherche les zéros du déterminant de l'opérateur  $\Theta$ , soit  $\det(\Theta) = 0$ . Pour l'étude, on notera le déterminant de la matrice  $2 \times 2$   $\Theta$  comme une fonction des variables complexes  $k_{z1}, k_{zm}, k_{z2}$  et de l'épaisseur réelle  $d > 0$  du film :

$$D(k_{z1}, k_{zm}, k_{z2}, d) = \left( \frac{k_{z1} + k_{zm}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \right) \left( \frac{k_{z2} + k_{zm}}{\varepsilon_2} \right) e^{-ik_{zm}d} - \left( \frac{k_{z1} - k_{zm}}{\varepsilon_1} - \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \right) \left( \frac{k_{z2} - k_{zm}}{\varepsilon_2} \right) e^{ik_{zm}d}$$

Pour connaître les modes propres du film mince, on cherchera donc les ondes qui sont solutions de l'équation de dispersion

$$\checkmark \quad D(k_{z1}, k_{zm}, k_{z2}, d) = 0 \quad \text{Eq. VII-10}$$

Avant de nous lancer dans la recherche des modes résonants proprement dit, nous allons maintenant calculer les coefficients de Fresnel du film mince.

### VII.2.b. Coefficients de Fresnel d'un film métallique

Pour écrire les différents coefficients de Fresnel, on considère une seule onde incidente dans le milieu d'indice fort  $\epsilon_2$ . On a par conséquent  $H_1^{inc} = 0$  et  $H_2^{inc} \neq 0$ . Dans cette configuration, en résolvant les équations de Maxwell, on aboutit aux coefficients de Fresnel suivant en polarisation 'p' :

$$r_p = \frac{\left( \frac{k_{z1}}{\epsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) \left( \frac{k_{z2}}{\epsilon_2} - \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) e^{-ik_{zm}d} - \left( \frac{k_{z1}}{\epsilon_1} - \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) \left( \frac{k_{z2}}{\epsilon_2} + \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) e^{ik_{zm}d}}{\left( \frac{k_{z1}}{\epsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) \left( \frac{k_{z2}}{\epsilon_2} + \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) e^{-ik_{zm}d} - \left( \frac{k_{z1}}{\epsilon_1} - \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) \left( \frac{k_{z2}}{\epsilon_2} - \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) e^{ik_{zm}d}}$$

et

$$t_p = \frac{4 \frac{k_{z2}}{\epsilon_2} \frac{k_{zm}}{\epsilon_m}}{\left( \frac{k_{z1}}{\epsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) \left( \frac{k_{z2}}{\epsilon_2} + \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) e^{-ik_{zm}d} - \left( \frac{k_{z1}}{\epsilon_1} - \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) \left( \frac{k_{z2}}{\epsilon_2} - \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) e^{ik_{zm}d}}$$

Comme dans le cas de l'interface unique, la recherche des valeurs qui permettent l'annulation du dénominateur des coefficients de transmission et de réflexion se fait grâce à l'équation de dispersion (Eq. VII-10). On confirme ainsi que les ondes solutions de l'équation de dispersion impliquent que les coefficients  $r_p$  et  $t_p$  tendent bien vers des valeurs infinies. On remarque une nouvelle fois, comme dans le cas de l'interface unique les similitudes entre le numérateur et le dénominateur du coefficient de réflexion. Nous reviendrons sur l'importance de ces similitudes dans le chapitre suivant.

### VII.2.c. Recherche des modes propres de film métallique

Lorsqu'on recherche les zéros de l'équation de dispersion, celle-ci est similaire à l'équation des modes en optique guidée pour un film diélectrique [Adams81]. Elle peut alors se réécrire sous la forme suivante :

$$\checkmark \quad D(k_{z1}, k_{zm}, k_{z2}, d) = 0 \quad \Leftrightarrow \quad th(ik_{zm}d) = \frac{\frac{k_{zm} \left( \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{z2}}{\varepsilon_2} \right)}{\varepsilon_m}}{\left( \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \right)^2 + \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} \frac{k_{z2}}{\varepsilon_2}} \quad \text{Eq. VII-11}$$

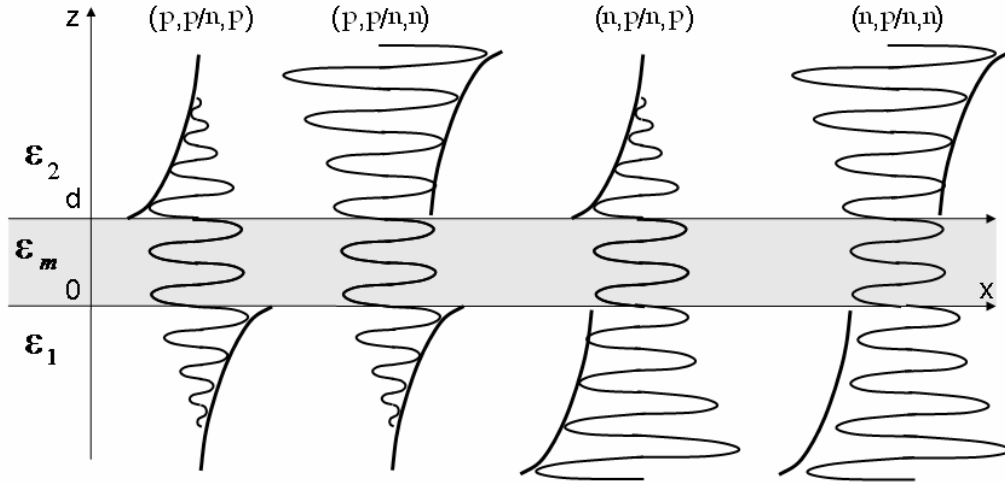
On remarque alors qu'il existe une solution triviale indépendante de l'épaisseur 'd' du film à l'équation Eq. VII-11 si  $k_{zm} = 0$ . En optique guidée, ce mode est appelé 'mode de coupure'. De plus, les propriétés de périodicité de la tangente hyperbolique font qu'il existera tout un ensemble (infini dénombrable) de modes résonants. Ces modes seront qualifiés de modes d'ordre supérieur.

Comme dans le cas de l'interface unique, on va chercher les valeurs de la composante  $k_x$  qui permettent d'annuler la fonction  $D$ . Cependant, la nature transcendantale de cette fonction implique que les solutions de l'équation de dispersion du film ne seront pas obtenus de façon analytique. Cette fonction est une fonction paire de la variable  $k_x$ , on présentera préférentiellement les solutions telles que  $\text{Im}(k_x) > 0$ . La composante  $k_x$ , a priori complexe,

permet de calculer les valeurs de  $k_z$  dans chacun des 3 milieux ( $k_{zi} = \pm \left( \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \varepsilon_i - k_x^2 \right)^{1/2}$ ). Cette

fonction est multiforme, chaque calcul de  $k_z$  a 2 valeurs complexes possibles, égalent à un signe près. Il y a donc a priori huit combinaisons distinctes de détermination qui peuvent résoudre l'équation de dispersion ( $\pm k_{z1}, \pm k_{zm}, \pm k_{z2}$ ). Les symétries de la fonction  $D$  permettent de limiter le nombre des déterminations à étudier. En effet, on remarque que la détermination du signe de la valeur de  $k_{zm}$  n'aura aucune influence sur les valeurs des solutions de l'équation de dispersion puisque  $D(k_{z1}, k_{zm}, k_{z2}, d) = -D(k_{z1}, -k_{zm}, k_{z2}, d)$ . Par conséquent on décide de considérer pour la suite de ce manuscrit la détermination qui donne une partie imaginaire positive pour  $k_{zm}$ . Il existe tout de même 1 ensemble de solutions pour chaque détermination et 4 déterminations différentes à étudier.

Aux 4 déterminations possibles correspondent différentes structures de modes. Ces structures sont étiquetées par les valeurs de la partie imaginaire du  $k_z$  choisies dans chacun des milieux diélectriques ((p,p,n), pour la détermination positive, positive et négative dans les milieux 1, métallique et 2 respectivement). Dans la partie métallique, l'onde comporte systématiquement les deux déterminations, tous les modes sont donc stationnaires selon l'axe Oz. L'allure des différentes ondes solutions de l'équation de dispersion est représentée pour chacune des déterminations sur la Figure VII-12.



**Figure VII-12: Classification des différents modes propres envisageables dans le cas d'un film métallique**

Seule la structure (p,p/n,p) représentée sur la Figure VII-12 confine l'énergie de l'onde dans le film. On parlera alors de mode guidés ou 'bound' [Burke86],[Dionne05]. Les autres modes ne sont pas des modes guidés par le film métallique. Ces différents modes sont les solutions 'mathématiques' du système. En effet, toutes les solutions mathématiques de l'équation de dispersion n'impliquent pas qu'il soit possible d'exciter les modes résonants dans les déterminations considérées. Les possibilités d'excitation optique de ces différents modes seront discutées dans le chapitre VIII de ce manuscrit.

La classification des modes selon la valeur des parties imaginaires des composantes  $k_z$  du vecteur d'onde permet de donner une indication sur la structure énergétique du mode. En pratique, la recherche des différents modes peut être réalisée en imposant la détermination sur les parties réelles ou sur les parties imaginaires des  $k_z$  dans les différents milieux.

Revenons maintenant sur le coefficient de Fresnel de réflexion défini précédemment pour le film mince. En ne précisant volontairement pas le mode de détermination choisi, on remarque que pour chacune des déterminations possibles, le coefficient  $r_p$  peut s'écrire sous la forme suivante :

$$r_p(k_{z1}^A, k_{zm}^A, k_{z2}^A, d) = \frac{D(k_{z1}^A, -k_{zm}^A, -k_{z2}^A, d)}{D(k_{z1}^A, k_{zm}^A, k_{z2}^A, d)} = \frac{D(k_{z1}^A, k_{zm}^B, k_{z2}^B, d)}{D(k_{z1}^A, k_{zm}^A, k_{z2}^A, d)}$$

On en déduit que les pôles et les zéros du coefficient de réflexion du film métallique seront représentés par les zéros de l'équation de dispersion dans deux cas de détermination différents ( $k_{zm}^B = -k_{zm}^A$  et  $k_{z2}^B = -k_{z2}^A$ ). Il s'agira ensuite de connaître la détermination imposée par la configuration expérimentale [Nevière80]. Cette propriété est particulièrement intéressante pour au moins deux raisons. La première est que l'étude complète des zéros de



la fonction  $D(k_{z1}, k_{zm}, k_{z2}, d)$  permet de connaître à la fois les modes propres résonant du film mince et les angles de Brewster qui impliquent une réflexion nulle. La seconde est qu'elle peut permettre de mesurer en champ lointain des points de la courbe de dispersion d'une des déterminations en observant l'angle de Brewster d'un film mince.

Nous allons maintenant chercher les zéros de la fonction  $D$  pour les 4 déterminations présentées. Comme il n'est plus possible de trouver une solution analytique pour la composante  $k_x$  du vecteur d'onde, on effectuera donc les recherches de façon numérique, par approximations successives. Avant de déterminer les différentes solutions de cette équation de dispersion dans le cas le plus général, nous allons étudier deux cas qui permettent de 'simplifier' le problème. On supposera tout d'abord que le film a une très forte épaisseur, puis nous ferons l'hypothèse que les deux milieux diélectriques ont la même permittivité. Enfin, nous traiterons le cas le plus général du film mince asymétrique.

#### VII.2.c.i. Cas du film asymétrique très épais

Dans ce cas, on admet que  $k_{zm}$  est un nombre complexe et que l'on a choisi sa partie imaginaire positive, l'équation de dispersion se simplifie et donne alors:

$$\checkmark \quad D(k_{z1}, k_{zm}, k_{z2}, d) \approx \left( \frac{k_{z1}}{\epsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) \left( \frac{k_{z2}}{\epsilon_2} + \frac{k_{zm}}{\epsilon_m} \right) e^{-ik_{zm}d} = 0 \quad \text{Eq. VII-12}$$

En effet, lorsque  $d$  tend vers l'infini, en comparaison du premier terme de la fonction  $D$ , la seconde partie de l'équation de dispersion (Eq. VII-10) est négligeable du fait de la très faible valeur du module de  $e^{ik_{zm}d}$ . On remarque alors qu'il existe des solutions particulières de l'équation de dispersion qui peuvent être approximées aux différentes solutions qui résolvent les équations de dispersion des deux interfaces uniques découplées (étude réalisée dans le chapitre VII.1). La recherche de ces solutions particulières sera effectuée par continuité en prenant pour point de départ les solutions des interfaces métal-diélectrique découplées et en faisant varier l'épaisseur du film. Les solutions de l'équation de dispersion ainsi trouvées, associées aux modes propres résonants des interfaces uniques et modifiées par le couplage des deux interfaces seront qualifiées de 'modes résonants d'ordre 0'.

Pour l'étude des modes propres des films minces symétrique et asymétrique, nous allons nous intéresser tout particulièrement à ces modes d'ordre 0. Dans les 4 déterminations, on va donc rechercher pour les films de fortes épaisseurs les deux zéros de l'équation de dispersion associés aux modes des interfaces uniques (une solution pour chacune des 2 interfaces  $\times$  4 déterminations). On recherche donc a priori 8 ensembles de solutions distincts associés aux modes résonants d'ordre 0. Cependant, comme dans le cas de

l'interface unique, on montre que l'équation de dispersion impose la détermination de  $k_{z2}$  pour une détermination de  $k_{z1}$  choisie :

$$D(k_{z1}, k_{zm}, k_{z2}, d) = 0 \quad \Leftrightarrow \quad \frac{k_{z2}^a}{\varepsilon_2} = \frac{\frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \left( \frac{k_{z1}^A}{\varepsilon_1} ch(ik_{zm}d) - \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} sh(ik_{zm}d) \right)}{\frac{k_{z1}^A}{\varepsilon_1} sh(ik_{zm}d) - \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} ch(ik_{zm}d)}$$

On recherche donc 4 courbes de dispersion associées aux modes résonants d'ordre 0 dans le cas des films minces. A ces 4 ensembles s'ajoutent les modes d'ordres supérieurs évoqués précédemment. Un ensemble de mode d'ordre supérieur est attendu dans chacune des 4 déterminations. Ces modes ne seront par contre pas approximés de façon analytique, même pour les films de fortes épaisseurs.

### VII.2.c.ii. Cas du film mince symétrique

Pour étudier le cas du film mince symétrique, on pose  $\varepsilon_2 = \varepsilon_1$ . Il faut donc considérer les quatre déterminations possibles avec la relation supplémentaire  $k_{z2} = \pm k_{z1}$ . Pour cette étude, on se concentrera principalement sur la recherche des modes d'ordre 0. Dans le cas du film très épais évoqué précédemment, le zéro de  $D$  associé au mode d'ordre 0 sera d'ordre 2. On doit donc s'attendre à une levée de dégénérescence du pôle lors de la diminution de l'épaisseur du film.

On va traiter les différents cas d'études dans cet ordre, le cas  $(k_{z1}, k_{zm}, -k_{z1})$ ,  $(-k_{z1}, k_{zm}, k_{z1})$ ,  $(k_{z1}, k_{zm}, k_{z1})$  et enfin  $(-k_{z1}, k_{zm}, -k_{z1})$ . On détermine la valeur de  $k_{z1}$  telle que sa partie imaginaire soit positive.

#### ▪ 1<sup>er</sup> cas : $(k_{z1}, k_{zm}, -k_{z1})$

Dans ce cas  $k_{z2} = -k_{z1}$ , on réécrit l'équation de dispersion de la manière suivante :

$$D(k_{z1}, k_{zm}, -k_{z1}, d) = 0 \quad \Leftrightarrow \quad 2 \left( \left( \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} \right)^2 - \left( \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \right)^2 \right) sh(ik_{zm}d) = 0$$

On retrouve alors de façon évidente la solution  $k_{zm} = 0$  et la solution en  $k_x$  obtenue pour l'interface découplée (étude effectuée dans le paragraphe VII.1). Cette solution représente la première des quatre courbes de dispersion attendues. Le mode n'est pas guidé, le champ diverge dans le milieu 2 puisque  $k_{z1}$  a été déterminé tel que sa partie imaginaire soit positive.

Ces différentes solutions présentent la particularité d'être indépendantes de l'épaisseur du film. Nous ne représentons pas les courbes de dispersion de ces solutions.

- 2<sup>ème</sup> cas :  $(-k_{z1}, k_{zm}, k_{z1})$

Dans ce cas on retrouve exactement le même résultat que précédemment. En effet, la symétrie du problème fait que ces deux déterminations sont rigoureusement équivalentes. La deuxième courbe de dispersion trouvée est donc égale à la première.

- 3<sup>ème</sup> cas :  $(k_{z1}, k_{zm}, k_{z1})$

Dans ce cas  $k_{z2} = k_{z1}$ , on réécrit alors l'équation de dispersion de la manière suivante :

$$D(k_{z1}, k_{zm}, k_{z1}, d) = 0 \Leftrightarrow \left( \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \right)^2 e^{-ik_{zm}d} = \left( \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} - \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \right)^2 e^{ik_{zm}d}$$

Les solutions peuvent alors être recherchées avec deux équations de dispersion différentes qui peuvent donner chacune un ensemble de solutions.

$$\checkmark \quad \omega_+ \rightarrow \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \operatorname{th} \left( \frac{k_{zm}d}{2i} \right) = 0 \quad \text{Eq. VII-13}$$

$$\checkmark \quad \omega_- \rightarrow \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \operatorname{coth} \left( \frac{k_{zm}d}{2i} \right) = 0 \quad \text{Eq. VII-14}$$

Comme dans le cas de l'équation de dispersion générale, on notera  $\omega_+(k_{z1}, k_{zm})$  et  $\omega_-(k_{z1}, k_{zm})$  les fonctions associées à chacune des deux branches. Dans ce cas, lorsque l'on observe la diminution de l'épaisseur du film, on confirme que le pôle se dédouble pour donner les branches de solutions distinctes  $\omega_+$  et  $\omega_-$ . On conserve ici la non dépendance des fonctions  $\omega_+$  et  $\omega_-$  à la détermination du signe de  $k_{zm}$ . Une fois les solutions en  $k_x$  trouvées, on exprime  $k_{zm}$  en fonction de  $k_x$ , en prenant sa partie imaginaire positive. On calcul ensuite  $k_{z1}$  directement en fonction de  $k_{zm}$  via les équations de dispersion Eq. VII-13 et Eq. VII-14. La détermination imposée par l'équation de dispersion étant évidemment celle utilisée pour la recherche des solutions. On a donc maintenant les 4 courbes de dispersions attendues.

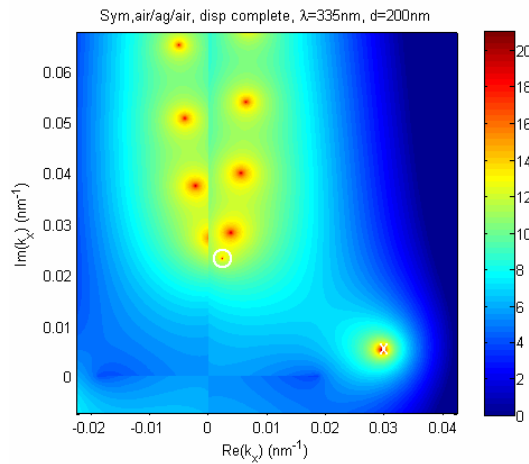
- 4<sup>ème</sup> cas :  $(-k_{z1}, k_{zm}, -k_{z1})$

Dans ce dernier cas, on trouve les mêmes équations que dans le cas précédent mais avec un argument multiplié par '-1' dans les fonctions hyperboliques. On montre alors que si les branches  $\omega_+$  et  $\omega_-$  ont des solutions ces deux nouvelles équations de dispersion ne peuvent pas donner de solutions associées aux modes d'ordre 0. En effet, pour les films de fortes épaisseurs, et par continuité pour le film mince étudié, on montre que

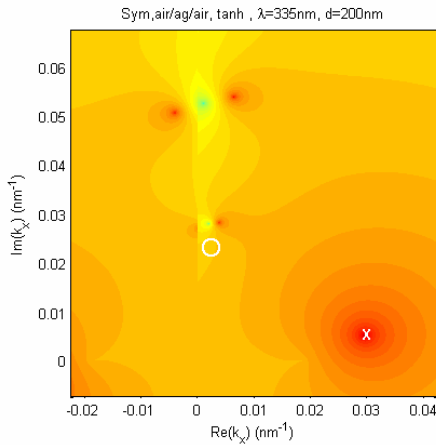
$$\frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \operatorname{th} \left( \frac{k_{zm}d}{2i} \right) \text{ et } \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} - \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \operatorname{th} \left( \frac{k_{zm}d}{2i} \right) \text{ ne peuvent pas être simultanément nuls, de même que } \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \operatorname{coth} \left( \frac{k_{zm}d}{2i} \right) \text{ et } \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} - \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \operatorname{coth} \left( \frac{k_{zm}d}{2i} \right).$$

▪ Etude approfondie du cas n°3

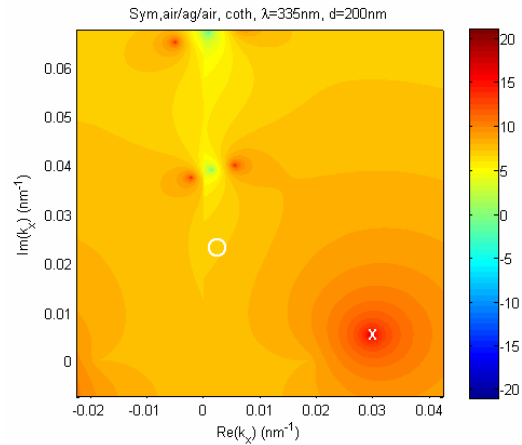
On considère donc le cas  $(k_{z1}, k_{zm}, k_{z1})$ , en choisissant toutes les parties imaginaires positives. Avant de nous lancer dans la recherche des solutions des deux branches  $\omega_+$  et  $\omega_-$ , nous avons tracé pour différentes longueurs d'onde l'inverse du carré des modules des fonctions  $D$ ,  $\omega_+$  et  $\omega_-$  en fonction de  $k_x$ . On représente ces fonctions dans le plan complexe pour cette même détermination (p,p,p). Comme les fonctions sont en  $k_x^2$  on se limite à présenter le demi-plan complexe supérieur. Un exemple est présenté en Figure VII-13, Figure VII-14 & Figure VII-15. La longueur d'onde choisie est 335nm et le film mesure 200nm d'épaisseur.



**Figure VII-13 : Cartographie de l'inverse du carré du module de la fonction  $D$ , dét. (p,p,p)**



**Figure VII-14: Cartographie de l'inverse du carré du module de l'équation  $\omega_+$ , dét. (p,p,p)**



**Figure VII-15: Cartographie de l'inverse du carré du module de l'équation  $\omega_-$ , dét. (p,p,p)**

Les fortes valeurs (en rouge) représentent les pôles de l'inverse du carré des modules des fonctions étudiées, qui sont donc les zéros de la fonction considérée. La solution associée à l'interface unique métal/air est située au centre du 'x'. On confirme bien dans chacun des cas, l'existence d'un mode d'ordre 0. En effet, comme le film est épais la solution donnée pour l'interface découplée permet une bonne approximation du mode d'ordre 0 du film

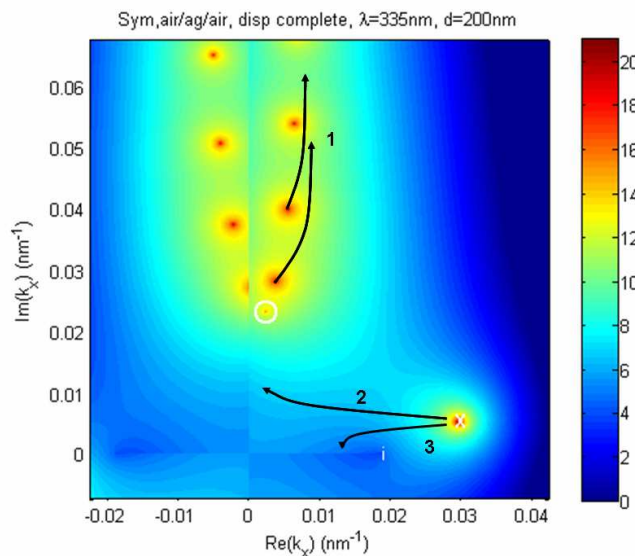
métallique. On remarque également qu'elle n'est pas unique. Le centre du 'o' désigne la solution  $k_{zm} = 0$ . La valeur de  $k_x$  correspondante n'est pas un zéro des équations  $\omega_+$  et  $\omega_-$ . Enfin, on remarque le début de l'ensemble des solutions associées aux modes d'ordre supérieur dues à la périodicité de la fonction tangente hyperbolique (Eq. VII-11). Cet ensemble se scinde en deux sous-ensembles associés à chacune des branches  $\omega_+$  et  $\omega_-$  (Eq. VII-13 et Eq. VII-14). Ces solutions semblent avoir une partie imaginaire importante et une partie réelle bornée. L'étude par représentation graphique ne peut pas suffire pour trancher. On suppose alors l'existence de cet ensemble de solutions, avec le vecteur d'onde  $k_x$  résonant d'ordre q  $k_q = k_q' + ik_q''$  dans le demi-plan supérieur. Lorsque le module de  $k_q$  devient très grand, on peut exprimer les  $k_z$  dans chacun des milieux tel que

$$k_{zi} = \left( \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \varepsilon_i - k_q^2 \right)^{1/2} \approx ik_q. \text{ On montre alors avec l'équation de dispersion complète}$$

$$D(k_{z1}, k_{zm}, k_{z2}, d) = 0 \text{ que } \frac{(\varepsilon_m + \varepsilon_1)(\varepsilon_m + \varepsilon_2)}{(\varepsilon_m - \varepsilon_1)(\varepsilon_m - \varepsilon_2)} = e^{-2k_q' d} e^{-2ik_q'' d}. \text{ Les solutions sont donc bien}$$

bornées en partie réelle et deviennent périodiques selon la partie imaginaire de  $k_q$ . La question est de savoir si ces solutions sont exclusivement radiatives, question qui n'a pas pu être tranchée. Nous verrons d'ailleurs que dans le cas du film asymétrique, certains modes d'ordre supérieur ne sont pas à gauche des courbes de lumière.

Avant de nous lancer dans la recherche automatique des solutions en fonction de la longueur d'onde et de l'épaisseur, nous avons observé quels étaient les déplacements possibles des différents pôles en fonction de l'épaisseur. On observe en effet différents comportements pour les solutions de l'équation de dispersion lors de la diminution de l'épaisseur du film. Certains des comportements observés sont schématisés sur la Figure VII-16.



**Figure VII-16: Représentation des comportements d'évolution des différents modes en fonction de l'épaisseur du film métallique, dét. (p,p,p)**

En tout premier lieu, les solutions associées aux pôles indépendants de l'épaisseur n'évoluent qu'en fonction de la longueur d'onde évidemment. Lorsque l'épaisseur diminue, les modes d'ordre supérieur fuient le long de l'axe imaginaire vers les grandes valeurs (comportement numéroté 1 sur la Figure VII-16). La partie réelle augmente ou diminue en fonction de la gamme spectrale d'observation. Il est possible que ces solutions 'disparaissent' quand la partie réelle devient nulle. C'est également le cas pour les solutions associées aux modes résonants d'ordre 0 (comportement n°2 sur la Figure VII-16). En fait, les solutions ne disparaissent pas complètement. Les discontinuités observées sont bien connues en Mathématiques dans le cadre de l'étude des surfaces de Riemann. C'est le choix de la détermination qui impose cette représentation. Le pôle varie de façon continue, mais pour le représenter, il faut imposer une autre détermination que celle choisie.

Cette remarque est doublement importante. Elle implique que pour tracer les courbes de dispersion dans leur intégralité, il est nécessaire de rechercher les solutions par continuité dans toutes les différentes déterminations, et elle implique également que pour certaines longueurs d'onde et certaines épaisseurs, il existe des modes résonants purement évanescents en  $k_x$ .

De la même façon, les solutions associées aux modes résonants d'ordre 0 peuvent se comporter de la manière n°3. Ce cas est particulièrement intéressant puisqu'il signifie qu'il existe une longueur d'onde et une épaisseur donnée pour lesquelles le mode propre associé est une onde purement propagative selon Ox. Enfin, il est possible que les solutions associées aux modes d'ordre 0 évoluent vers deux valeurs limites quand l'épaisseur devient très petite :  $\frac{2\pi n_1}{\lambda}$  et l'infini.

Finalement, pour tracer les courbes de dispersion, on recherche de proche en proche les zéros de la fonction  $D$  en faisant varier l'épaisseur et la longueur d'onde. Pour être sûr de ne pas passer d'un zéro à l'autre, il est nécessaire d'effectuer une variation lente et continue, avec une fenêtre de recherche très resserrée. Les courbes sont recherchées de manière redondante depuis les basses et les grandes longueurs d'onde dans la gamme spectrale de  $\lambda=220\text{nm}$  à  $\lambda=1880\text{nm}$ . Les valeurs d'indice utilisées pour décrire le milieu métallique sont celles données par la référence suivante [Johnson&Christy72]. Pour s'assurer que toutes les solutions associées aux modes calculés sont bien solutions, on vérifie de façon systématique que les parties réelle et imaginaire de l'équation de dispersion sont bien nulles à l'erreur machine près (double précision du Fortran).

- Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  pour un film mince symétrique

Les courbes de dispersion de la composante  $k_x$  associées au mode d'ordre 0 de film symétrique Air/Ag/Air sont représentées sur les Figure VII-17, Figure VII-18 pour la branche  $\omega_+$ , et sur les Figure VII-19 et Figure VII-20 pour la branche  $\omega_-$ . On représente systématiquement les courbes de dispersion pour des films d'épaisseur 1000, 100, 50 et 25nm.

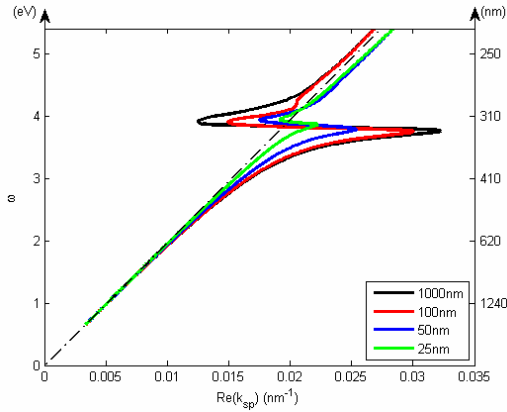


Figure VII-17: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  associée à  $\omega_+$

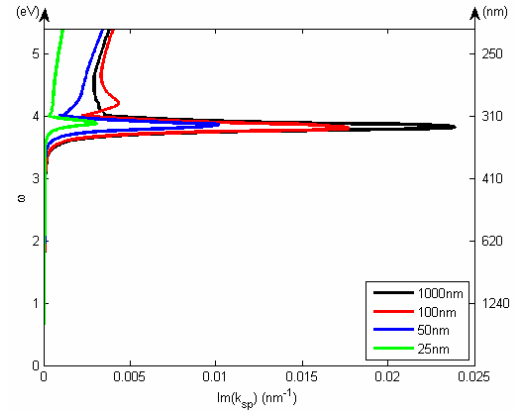


Figure VII-18: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  associée à  $\omega_+$

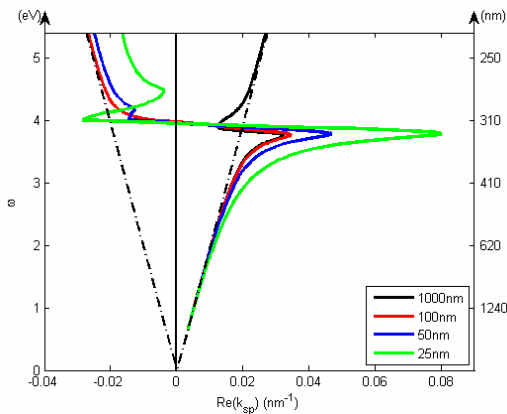


Figure VII-19: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  associée à  $\omega_-$

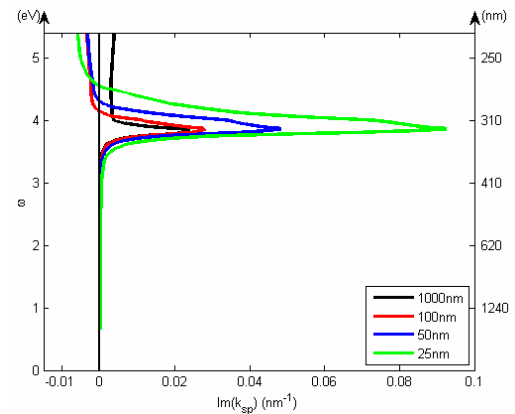


Figure VII-20: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  associée à  $\omega_-$

La courbe  $\omega_+$  est bien continue et toutes les valeurs des parties réelles et imaginaires ont le même signe. La courbe pour 1000nm d'épaisseur sert de référence pour chacune des courbes. On remarque 'l'ouverture' de la résonance plasma et plasmon de surface accompagnée d'une augmentation de la partie imaginaire des solutions. La branche  $\omega_+$  est qualifiée de 'long range' car les valeurs de la partie imaginaire des modes de surfaces sont plus faibles que celles de la branche  $\omega_-$ . L'amortissement est par conséquent moins important et les distances de propagation plus grandes.

Pour la courbe  $\omega_-$ , l'ouverture de la résonance est encore plus importante que pour la branche  $\omega_+$ . On remarque également que les valeurs des parties réelles et imaginaires des modes associés à la branche  $\omega_-$  peuvent changer de signe. Pour les zones extrêmes (faibles et grandes longueurs d'onde) ce changement ne porte pas à conséquence, en effet, on sait que  $-k_x$  dont les parties réelles et imaginaires sont positives pour les petites longueurs d'onde est également solution. Il existe cependant une gamme spectrale qui varie selon l'épaisseur du film et pour laquelle la propagation et l'atténuation du mode sont de signes opposés

( $290\text{nm} < \lambda < 310\text{nm}$  et  $275\text{nm} < \lambda < 310\text{nm}$  respectivement pour des films de 50 et 25nm d'épaisseur).

Il est maintenant nécessaire de calculer les valeurs des différents  $k_z$  dans chacun des milieux. Connaissant les valeurs exactes des composantes suivant l'axe Ox, ce calcul est

effectué via l'expression  $k_{zm} = \left( \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \varepsilon_m - k_x^2 \right)^{1/2}$  dans le milieu métallique (avec la

détermination choisie) et directement d'après l'équation de dispersion dans le milieu diélectrique. On représente maintenant les courbes de dispersions des composantes  $k_z$  pour la branche de solutions  $\omega_+$  sur les Figure VII-21, Figure VII-22, Figure VII-23 et Figure VII-24, et pour la branche  $\omega_-$  sur les Figure VII-25, Figure VII-26, Figure VII-27 et Figure VII-28.

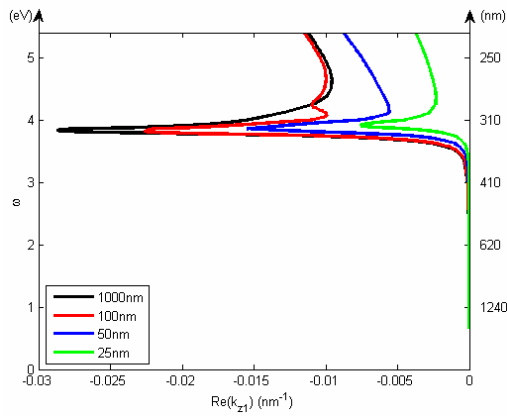


Figure VII-21: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z1}$  associée à  $\omega_+$

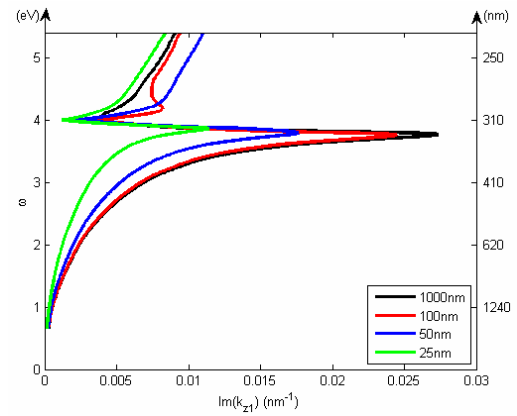


Figure VII-22: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z1}$  associée à  $\omega_+$

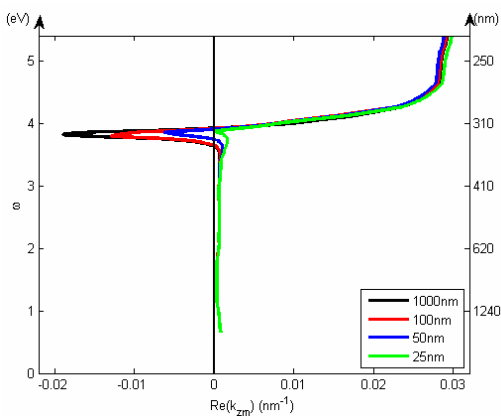


Figure VII-23: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{zm}$  associée à  $\omega_+$

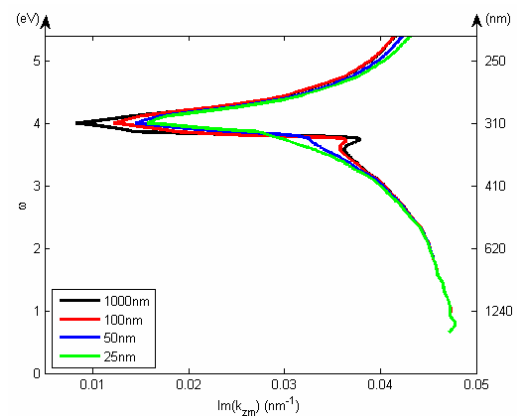


Figure VII-24: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{zm}$  associée à  $\omega_+$

On remarque que pour les films d'épaisseurs supérieures à 25nm, il existe deux longueurs d'onde pour lesquelles l'onde dans le film métallique est purement évanescente



selon l'axe Oz. De plus, si il est vrai que la partie réelle du vecteur d'onde selon l'axe Oz est faible dans le milieu diélectrique hors de la zone de résonance, il n'est pas nul. D'où l'intérêt du calcul exact qui ne néglige pas cette partie réelle pour rechercher l'excitateur le mieux adapté. On remarque enfin que la partie imaginaire de  $k_{z1}$  est strictement positive, ce qui implique que le mode est guidé sur toute la gamme spectrale et pour toutes les épaisseurs représentées.

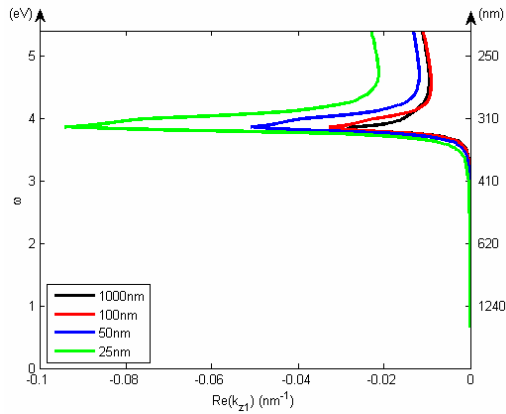


Figure VII-25: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z1}$  associée à  $\omega_-$

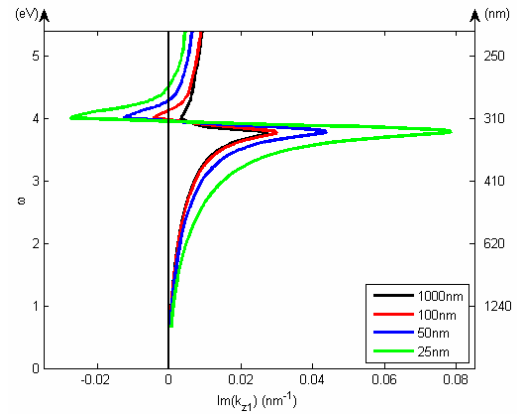


Figure VII-26: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z1}$  associée à  $\omega_-$

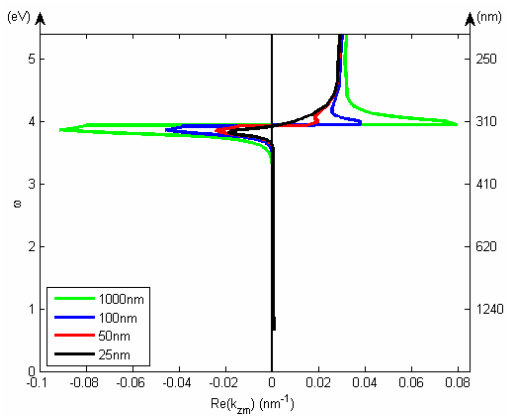


Figure VII-27: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{zm}$  associée à  $\omega_-$

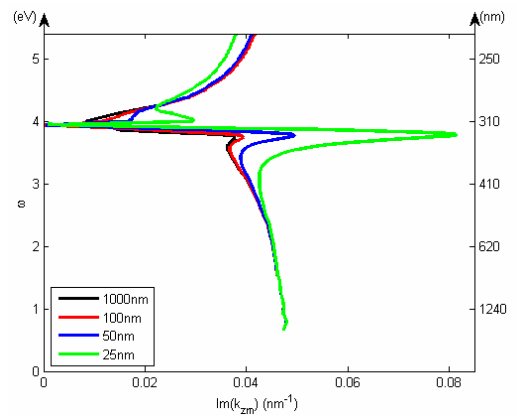


Figure VII-28: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{zm}$  associée à  $\omega_-$

Dans le cas de la courbe  $\omega_-$ , on remarque que le calcul de  $k_{zm}$  présente une discontinuité due à la détermination utilisée ( $\text{Im} > 0$ ). Mais les valeurs de  $k_{zm}$  des différents modes varient bien de façon continue. La partie imaginaire de  $k_{z1}$  est nulle aux valeurs pour

lesquelles  $\text{Re}(k_{sp})$  et  $\text{Im}(k_{sp})$  sont nulles ( $k_{z1} = \left( \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \varepsilon_m - k_{sp}^2 + k_{sp}^{\prime 2} - 2ik_{sp}' k_{sp}'' \right)^{1/2}$ ). On

remarque alors que dans ce cas, la partie imaginaire du  $k_{z1}$  devient négative pour la gamme spectrale dans laquelle la propagation et l'atténuation de l'onde ne se font pas dans la même

direction. Le mode associé n'est donc plus guidé par le film dans cette gamme de longueur d'onde. On est dans le cas de modes à pertes pour le film mince. Je me permets de préciser que les résultats présentés ici ne sont pas en accord avec certains résultats présentés dans la littérature [Dionne05]. En effet, dans notre étude, les dernières valeurs de  $k_x$  pour lesquelles le mode est guidé sont : purement réelles non nulles pour les hautes longueurs d'onde et purement imaginaires non nulles pour les basses longueurs d'onde.

Nous sommes maintenant parvenus à la fin de notre étude des modes résonants d'un film mince symétrique. Si les solutions associées aux modes d'ordre 0 ont été données pour les différentes déterminations, il serait également intéressant de rechercher les solutions associées aux modes d'ordre supérieur. Ces solutions ont certes une partie imaginaire plus importante que celle des modes présentés, mais leur contribution peu ne pas être négligeable comme nous le verrons dans le paragraphe suivant qui concerne l'étude des modes propres résonants d'un film mince métallique asymétrique.

### VII.2.c.iii. Cas du film mince asymétrique

Dans ce cas, on considère un film mince compris entre deux milieux diélectriques (l'air et le verre). Aucune simplification de l'équation de dispersion n'est envisagée, on considère donc l'équation de dispersion (Eq. VII-10) dans son intégralité :

$$D(k_{z1}, k_{zm}, k_{z2}, d) = \left( \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \right) \left( \frac{k_{z2}}{\varepsilon_2} + \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \right) e^{-ik_{zm}d} - \left( \frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} - \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \right) \left( \frac{k_{z2}}{\varepsilon_2} - \frac{k_{zm}}{\varepsilon_m} \right) e^{ik_{zm}d} = 0$$

On recherche donc dans un premier temps 4 courbes de dispersion associées aux modes résonants d'ordre 0. La recherche est effectuée de la même façon que pour le film mince symétrique. Pour des raisons pratiques, pour la recherche des zéros on impose cette fois-ci la détermination des composantes  $k_z$  dans les milieux diélectriques sur la partie réelle. Les courbes de dispersion permettant ensuite de connaître avec précision la structure des modes résonants obtenus. On classe les différentes solutions par leurs points de départ  $k_{sp}^{m/a}$  ou  $k_{sp}^{m/v}$  pour les grandes longueurs d'onde et les fortes épaisseurs. Comme dans le cas du film mince symétrique, on calcule la courbe des grandes longueurs d'onde vers les courtes longueurs d'onde, mais également dans l'autre sens. On vérifie systématiquement la valeur des parties réelles et imaginaires de la fonction  $D$ . Afin de minimiser le nombre des courbes présentées, on ne représente pas les courbes de dispersion associées au calcul de la composante  $k_{zm}$ . Sans négliger l'importance de celles-ci, nous allons nous concentrer sur les composantes des vecteurs d'onde que nous pourrions mesurer en champ proche. Nous allons maintenant représenter les 4 ensembles de solutions associés aux modes résonants des interfaces uniques.

▪ 1<sup>er</sup> détermination : ensemble de solution n°1

Ce premier ensemble de solutions est associé au mode résonant de l'interface métal/air  $k_{sp}^{m/a}$ , détermination (-,-/+ ,+). Le mode n'est pas confiné (mode 'leaky') et les valeurs de  $k_z$  calculées dans chacun des milieux diélectriques montrent que le mode transfère l'énergie de l'air vers le verre.

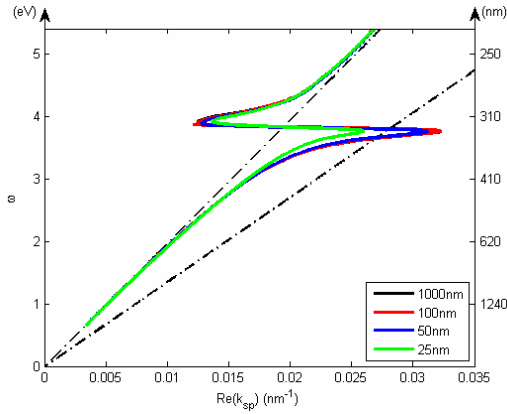


Figure VII-29: Courbe des dispersion de la partie réelle de  $k_x$  du mode résonant

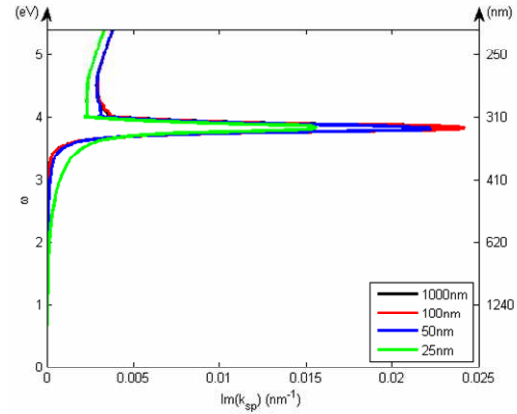


Figure VII-30: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  du mode résonant

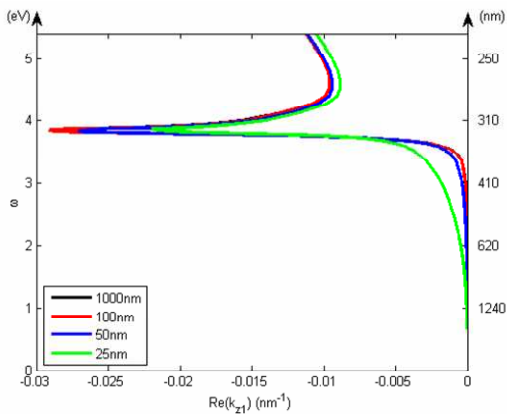


Figure VII-31: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z1}$  du mode résonant

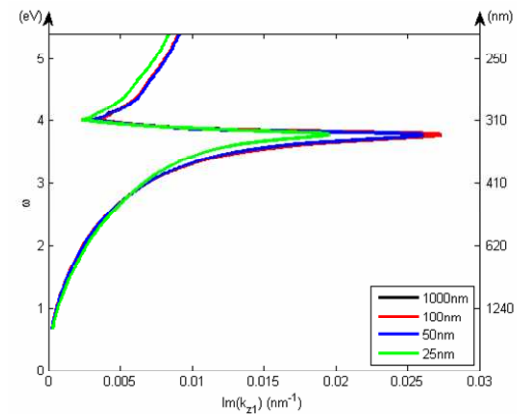


Figure VII-32: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z1}$  du mode résonant

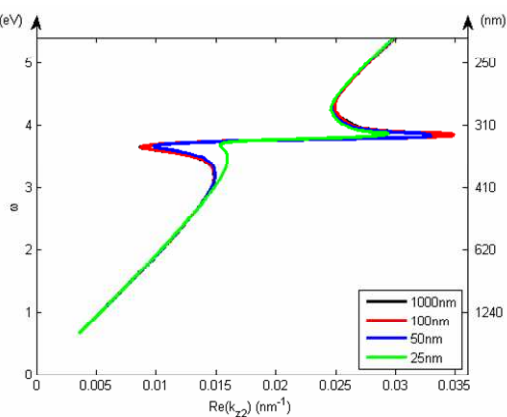


Figure VII-33: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z2}$  du mode résonant

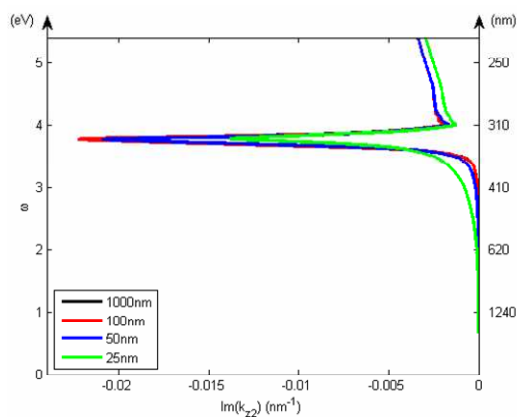


Figure VII-34: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z2}$  du mode résonant

▪ 2<sup>ème</sup> détermination : ensemble de solution n°2

Cet ensemble de solutions est associé au mode résonant de l'interface métal/verre, détermination (+,-/+,-). Le mode n'est pas confiné (mode 'leaky') et les valeurs de  $k_z$  des milieux diélectriques montrent que le mode transfère l'énergie du verre vers l'air.

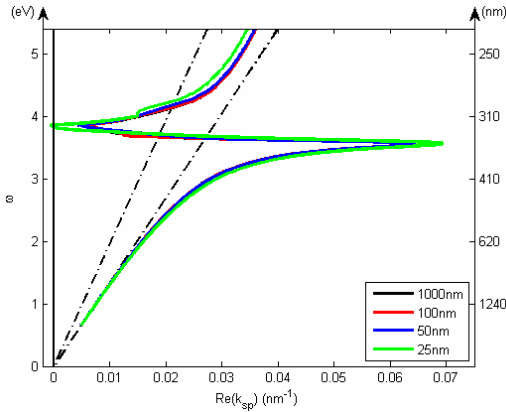


Figure VII-35: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  du mode résonant

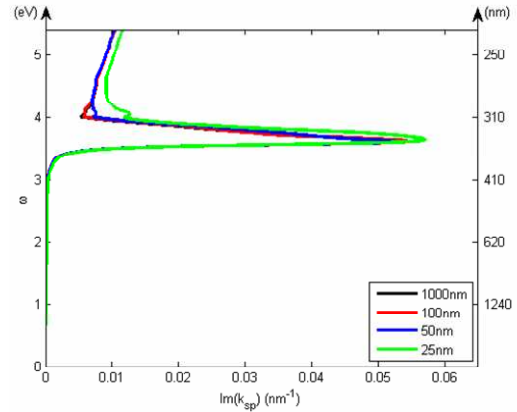


Figure VII-36: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  du mode résonant

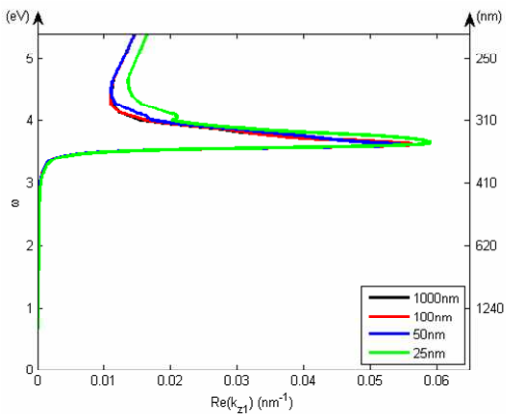


Figure VII-37: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z1}$  du mode résonant

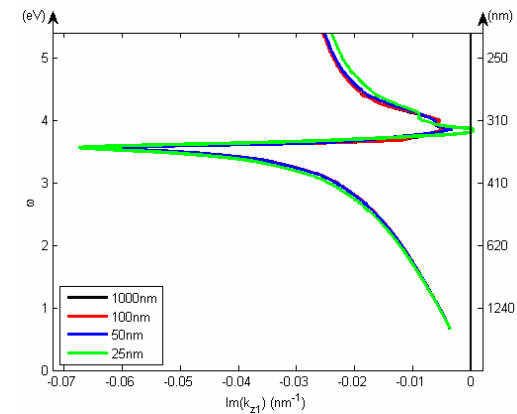


Figure VII-38: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z1}$  du mode résonant

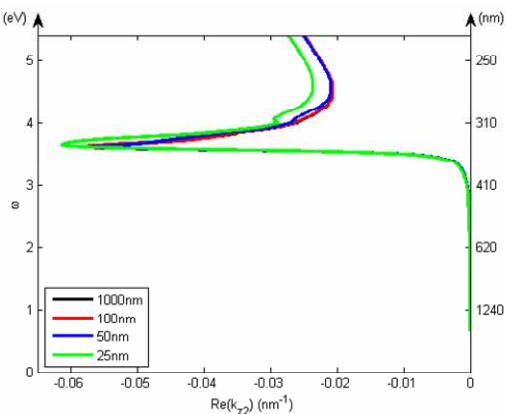


Figure VII-39: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z2}$  du mode résonant

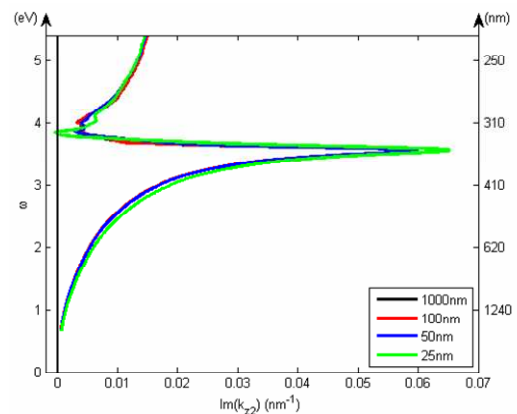


Figure VII-40: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z2}$  du mode résonant

▪ 3ème détermination : ensemble de solutions n°3-a

Dans cette détermination, il existe deux ensembles de solutions associées aux modes d'ordre 0. Cet ensemble numéroté 3-a est associé au mode d'interface métal/air  $k_{sp}^{m/a}$  pour les grandes longueurs d'onde, détermination (-,-/+,-,-).

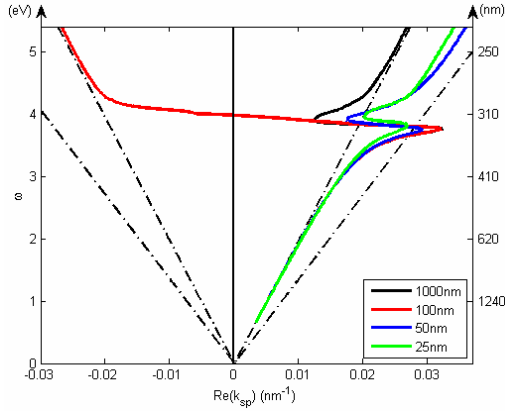


Figure VII-41: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  du mode résonant

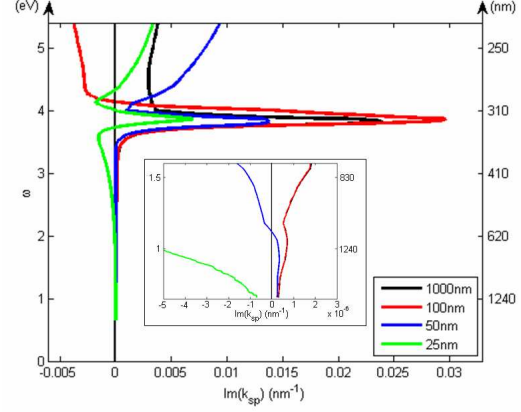


Figure VII-42: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  du mode résonant

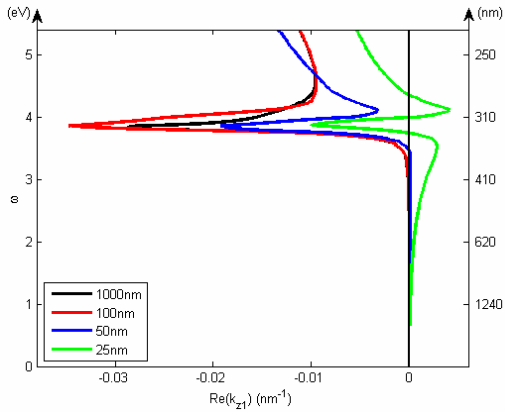


Figure VII-43: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z1}$  du mode résonant

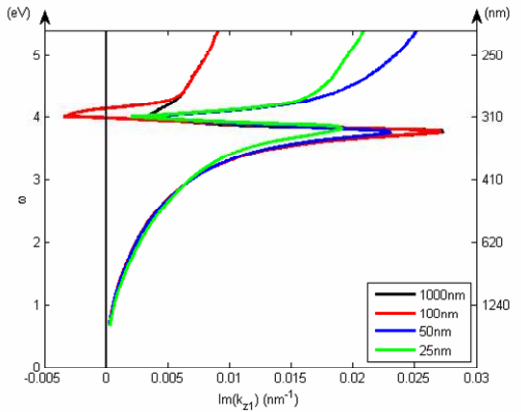


Figure VII-44: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z1}$  du mode résonant

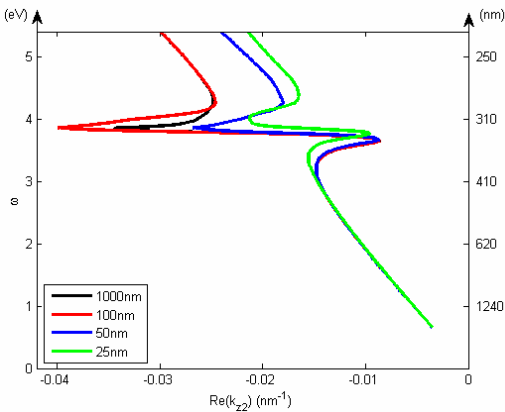


Figure VII-45: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z2}$  du mode résonant

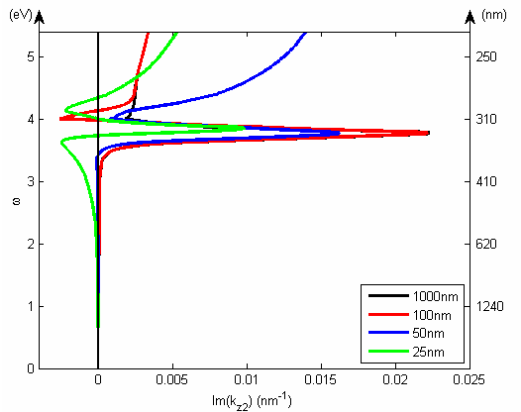
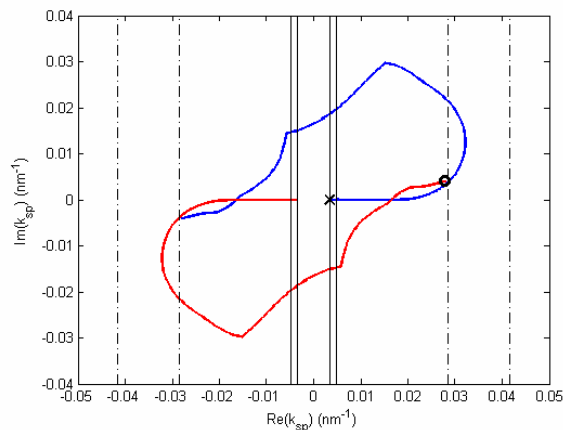


Figure VII-46: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z2}$  du mode résonant

On remarque que cet ensemble de solution présente des valeurs de vecteurs d'onde  $k_x$  qui sont purement réelle ou purement imaginaire. Toutes les courbes tracées sont bien associées à la droite de lumière 'air' (mode associé au  $k_{sp}^{m/a}$ ) pour les grandes longueurs d'onde. On remarque tout de même que pour une épaisseur de 100nm, aux basses longueurs d'onde, la courbe de dispersion tangente la droite de lumière 'air' mais pour des valeurs de  $k_x$  négatives. De plus, nous allons également voir que pour les très basses longueurs d'ondes, les courbes de dispersion associées aux épaisseurs de 50 et 25nm tangent en fait la droite de lumière 'verre'.

▪ Cas de la courbe de dispersion obtenue pour 100nm d'épaisseur

Pour cette épaisseur, aux hautes et basses longueurs d'onde, la courbe de dispersion tangente la même droite de lumière mais pour des valeurs de  $k_x$  positives puis négatives. En fonction de la longueur d'onde, on passe continûment de l'une à l'autre des droites de lumière. Pour cette épaisseur, on associe alors clairement le mode résonant d'ordre 0 au mode d'interface métal/air. Pour représenter plus explicitement cette évolution, on trace dans le plan complexe les courbes de dispersion pour le vecteur d'onde  $k_x$  obtenues depuis les grandes (en bleu, point de départ marqué par une croix) et les basses longueurs d'onde (en rouge, point de départ marqué par un cercle) pour la détermination  $+k_x$  (Figure VII-47). Pour rappel, on représente également par des droite verticales les valeurs de la droite de lumière dans l'air et le verre pour les grandes longueurs d'onde (1880nm, trait plein) et pour les basses longueurs d'onde (220nm, trait discontinu).

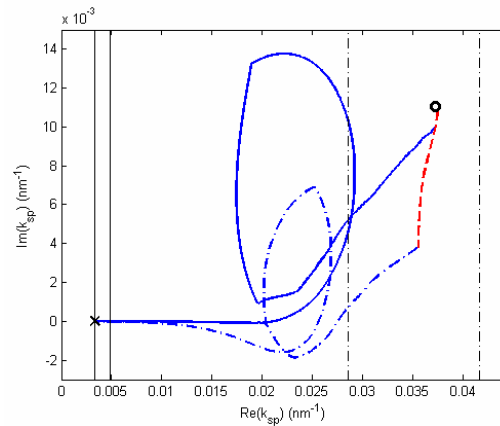


**Figure VII-47: Représentation dans le plan complexe des courbes de dispersion de la composante  $k_x$  du mode résonant d'un film mince Air/Ag/Verre de 100nm d'épais, détermination (-, -/+,-)**

Sur la Figure VII-47 on remarque que ces deux courbes sont en fait symétriques l'une de l'autre par rapport à l'origine du plan complexe. Ce sont donc en fait les mêmes courbes de dispersion mais pour les deux déterminations  $+k_x$  et  $-k_x$ . Avec cette représentation, on observe donc clairement pourquoi la courbe de dispersion est d'abord associée à la droite de lumière pour les parties réelles 'positives' puis 'négatives'.

▪ Cas des courbes de dispersion obtenues pour 50 et 25nm d'épaisseur

Pour les épaisseurs de 50 et 25 nm, en faisant varier l'épaisseur du film, les solutions trouvées pour les faibles longueurs d'onde ne sont pas obtenues en prenant pour point de départ le mode résonant de l'interface métal/air, mais celui de l'interface métal/verre. Le changement observé n'est pas dû à une erreur informatique. Les précautions prises nous ont permis de confirmer que les courbes de dispersion obtenues sont bien exactes. De la même façon que pour l'épaisseur de 100nm, on représente pour ces deux épaisseurs les courbes de dispersion dans le plan complexe sur la Figure VII-48.



**Figure VII-48: Représentation dans le plan complexe des courbes de dispersion de la composante  $k_x$  du mode résonant d'un film mince Air/Ag/Verre de 50 et 25nm d'épais, détermination (-,-/+,-)**

Sur la Figure VII-48 sont représentées les courbes de dispersion de la composante  $k_x$  pour des films de 50 et 25nm. Pour rappel, on représente également par des droites les valeurs de la courbe de lumière dans l'air et le verre pour les grandes longueurs d'onde (1880nm, trait plein) et pour les basses longueurs d'onde (220nm, trait discontinu). Les points de départ ( $k_{sp}^{m/a}$ ) des courbes obtenues depuis les grandes longueurs d'onde sont marqués par des croix noires (confondues). La courbe en trait plein représente la courbe de dispersion du film de 50nm d'épaisseur et la courbe en trait discontinu bleu, celle du film de 25nm. On a représenté en rouge l'évolution du point de départ ( $k_{sp}^{m/v}$ ) depuis les basses longueurs d'onde (cercle noir) en fonction de l'épaisseur du film. On confirme ainsi que le point de départ pour les basses et les hautes longueurs d'onde n'est pas associé à la résonance de la même interface. Les différentes précautions prises nous ont permis d'exclure un problème numérique. Puisqu'il existe deux ensembles de solution dans cette détermination, la comparaison entre les différentes courbes de dispersion fut nécessaire pour être certain que les zéros ne se soient pas 'croisés'. Cette remarque implique que l'association à la résonance d'interface métal/air de la courbe de dispersion présentée n'est valable que pour les grandes longueurs d'onde.

Nous allons maintenant tracer les courbes de dispersion du dernier ensemble de solutions associé aux modes d'ordre 0. Cet ensemble est associé à la résonance d'interface  $k_{sp}^{m/v}$  pour les grandes longueurs d'onde dans la même détermination.

▪ 3ème détermination : ensemble de solutions n°3-b

Cet ensemble de solutions est associé au mode résonant de l'interface métal/verre  $k_{sp}^{m/v}$ , dans la même détermination (-,-/+,-) que l'ensemble de solution n°3-a. On parlera donc de l'ensemble de solutions n°3-b.

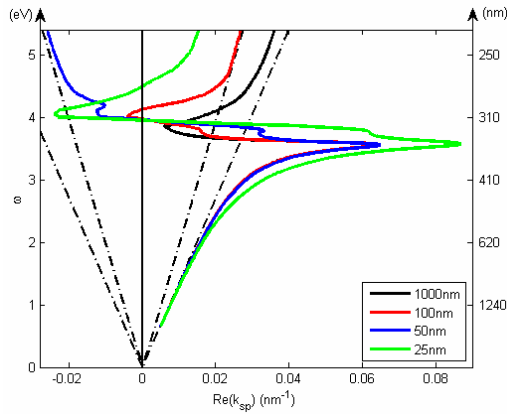


Figure VII-49: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  du mode résonant

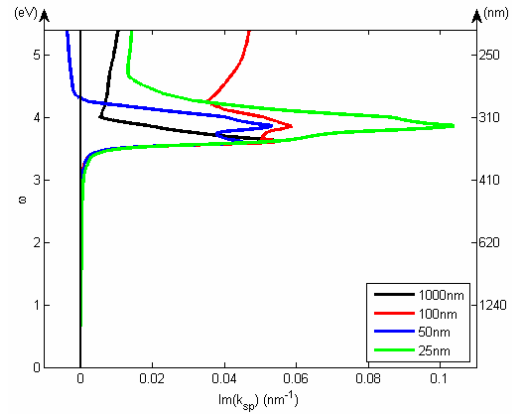


Figure VII-50: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  du mode résonant

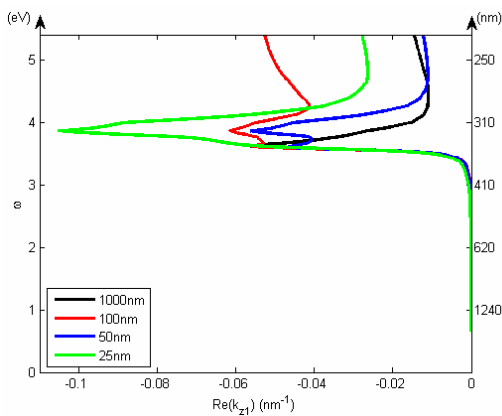


Figure VII-51: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z1}$  du mode résonant

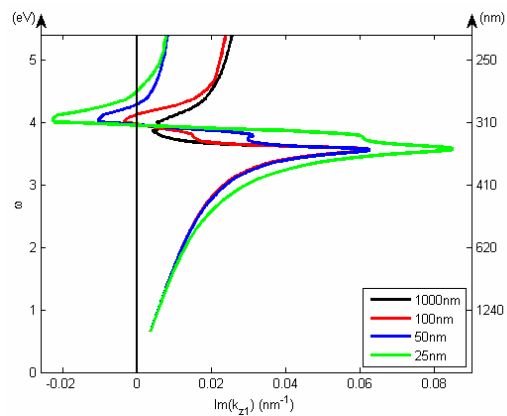


Figure VII-52: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z1}$  du mode résonant

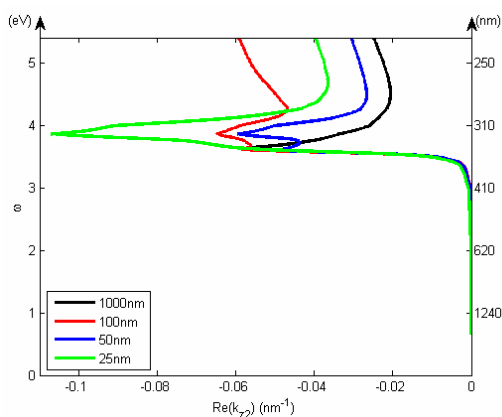


Figure VII-53: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z2}$  du mode résonant

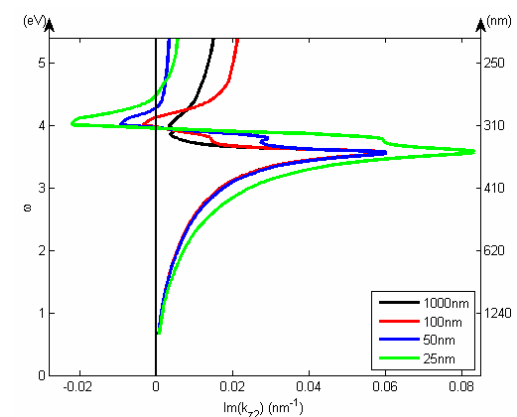


Figure VII-54: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z2}$  du mode résonant

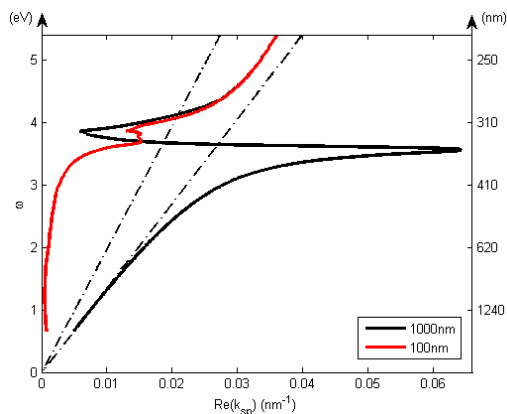


Les solutions présentées tangent bien la droite de lumière du verre pour les grandes longueurs d'onde. On remarque que pour les faibles épaisseurs (50 et 25nm) le phénomène inverse du cas précédent se produit, on passe continûment de la solution associée à l'interface métal/air pour les basses longueurs d'onde à la solution associée à l'interface métal/verre pour les grandes longueurs d'onde.

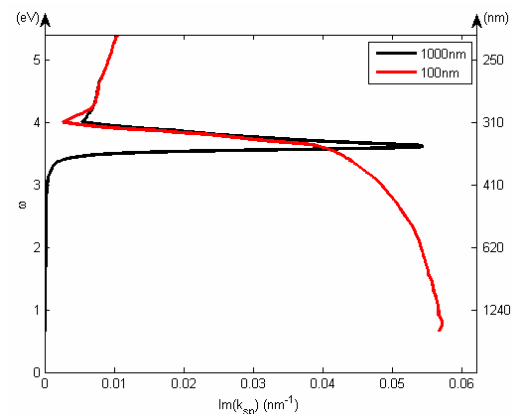
Pour l'épaisseur de 100 nm un autre comportement est encore observé. Le mode est d'abord associé à la droite de lumière du verre pour les grandes longueurs d'onde. Mais la solution donnée par continuité vers les basses longueurs d'onde ne permet pas de retrouver la solution associée à l'interface métal/verre. Dans ce cas, on obtient en fait la solution associée au premier des modes d'ordre supérieur. Cette remarque montre l'importance de ne pas négliger l'étude des pôles associés aux modes d'ordres supérieurs.

- Cas de la courbe de dispersion du film de 100nm d'épaisseur

Pour confirmer cette observation on recherche donc également les courbes de dispersion associé au premier mode d'ordre supérieur depuis les grandes longueurs d'onde dans cette détermination (en rouge sur les Figure VII-55, Figure VII-56).



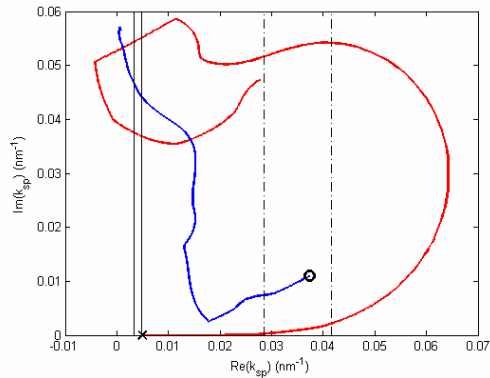
**Figure VII-55: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$**



**Figure VII-56: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$**

Sur les Figure VII-55, Figure VII-56, on compare les courbes de dispersion de la composante  $k_x$  obtenues pour le premier mode d'ordre supérieur avec la courbe de dispersion obtenue pour le mode d'ordre 0 pour un film de 1000nm d'épaisseur. On remarque alors que la courbe obtenue pour le mode d'ordre 0 depuis les grandes longueurs d'onde tangente bien le mode associé au mode d'ordre 0 pour les basses longueurs d'onde.

Pour confirmer cette observation on représente dans le plan complexe les deux courbes de dispersion associées à la résonance d'interface métal/verre pour un film de 100nm d'épaisseur (Figure VII-57). Celle obtenue depuis les basses longueurs d'onde (en bleu) et celle obtenue depuis les grandes longueurs d'onde (en rouge).



**Figure VII-57: Représentation dans le plan complexe des courbes de dispersion de la composante  $k_x$  du mode résonant d'un film mince Air/Ag/Verre de 100nm d'épaisseur, détermination (-,+,-)**

La courbe bleue, tracée à partir du pôle  $k_{sp}^{m/v}$  (rond noir) pour les basses longueurs d'onde, ne joint pas un pôle associé à un mode résonant d'interface unique mais le premier pôle d'ordre supérieur (avec une forte partie imaginaire). Il en est de même pour la courbe tracée à partir du pôle  $k_{sp}^{m/v}$  (croix noire) pour les hautes longueurs d'onde. On remarque que les courbes se croisent en deux points. Mais ces points ne sont pas obtenus pour la même longueur d'onde.

- Etude de la 4<sup>ème</sup> détermination (+,-/+ ,+)

La détermination pour laquelle les parties réelles de  $k_{z1}$  et  $k_{z2}$  sont positives a également été étudiée. Elle ne présente pas de solutions associée aux modes d'ordre 0. L'étude de ce dernier cas nous a confirmé que les 4 ensembles de solutions présentés représentent bien l'intégralité des modes propres d'ordre 0.

- Etude des modes propres d'ordres supérieurs

Avant de conclure cette étude théorique, nous allons encore présenter les courbes de dispersion des 3 premiers modes d'ordre supérieur dans chacune des déterminations pour un film de 100nm d'épaisseur (Figure VII-58, Figure VII-59, Figure VII-60, Figure VII-61, Figure VII-62). En effet, si il n'existe pas de mode d'ordre 0 dans la 4<sup>ème</sup> détermination étudiée, il existe bien un ensemble de mode d'ordre supérieur.

Les courbes relatives au mode d'ordre 1 sont tracées en trait plein, pour le mode d'ordre 2 en trait discontinu et en pointillé pour l'ordre 3. Pour le mode d'ordre 1 dans la détermination (-,-/+,-) en rouge, on représente les courbes de dispersion de la composante  $k_x$  obtenues depuis les basses et les grandes longueurs d'ondes (cas d'étude précédent). La couleur de chacune des courbes est en rapport avec la détermination choisie. On trace volontairement toutes les courbes des parties imaginaires sur la Figure VII-62 à des fins de comparaison.

▪ Courbes de dispersion des 3 premiers ordres supérieurs

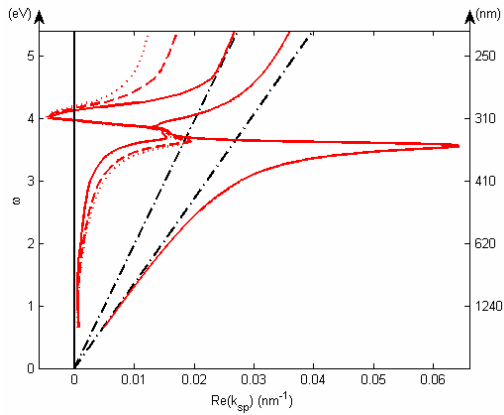


Figure VII-58: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  des 3 premiers modes d'ordre supérieur, détermination (+,-/+,+)

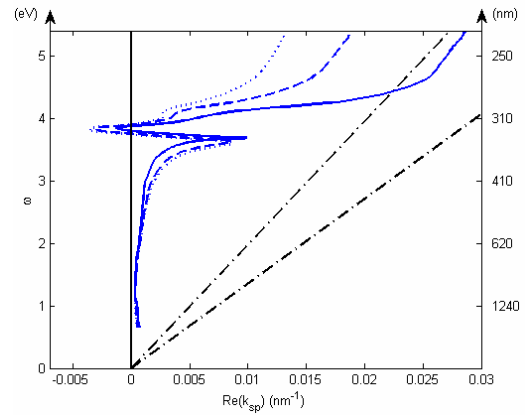


Figure VII-59: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  des 3 premiers modes d'ordre supérieur, détermination (-,-/+,+)

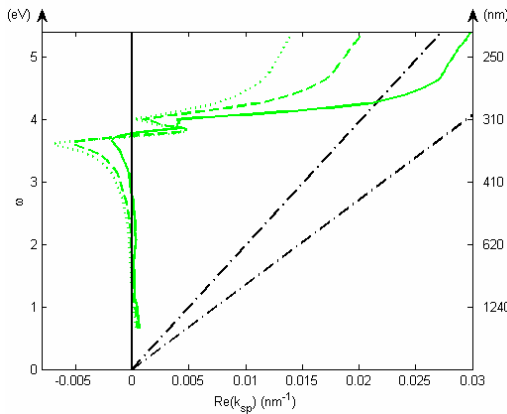


Figure VII-60: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  des 3 premiers modes d'ordre supérieur, détermination (+,-/+, -)

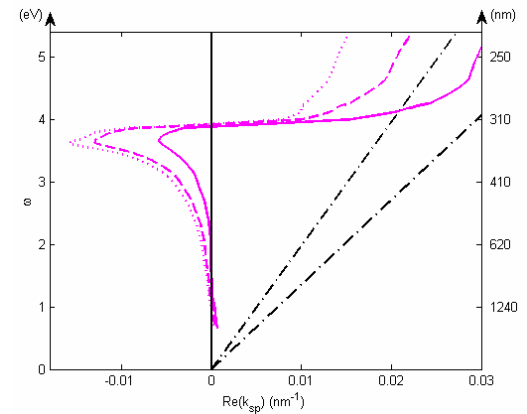


Figure VII-61: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  des 3 premiers modes d'ordre supérieur, détermination (-,-/+, -)

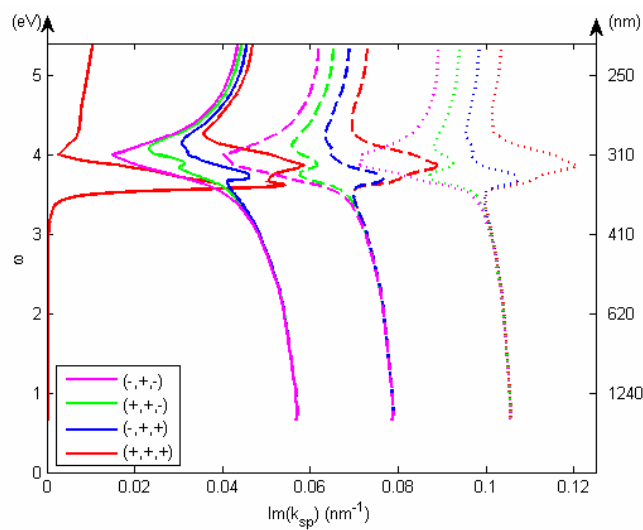


Figure VII-62: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  des 3 premiers modes d'ordre supérieur

On observe dans un premier temps que les parties réelles des courbes de dispersion dans les différentes déterminations peuvent prendre des valeurs supérieures à la droite de lumière métal/air. Dans ce cas, on confirme que certains des modes d'ordres supérieurs ne sont pas strictement radiatifs. Pour toutes les longueurs d'onde, plus l'ordre du mode est élevé et plus les écarts sont faibles entre les courbes de dispersion des parties réelles de chacun des ordres successifs. Les valeurs des parties imaginaires présentent quand à elles un décalage quasi-périodique (cf VII.2.c.ii) entre les différents ordres d'une même détermination. Cette quasi-périodicité est inversement proportionnelle à l'épaisseur du film. Cette forte augmentation de la partie imaginaire implique que même si ces modes sont excités, les longueurs de propagation associées sont très faibles (<25nm pour l'ordre 2 et <15nm pour l'ordre 3). Même si ces modes peuvent probablement être excités, leur observation ne peut alors se faire que très localement et en champ proche.

Nous sommes maintenant arrivés à la fin de cette étude théorique des équations de dispersion des modes résonants de film mince métallique. Nous avons tracé toutes les solutions exactes associées aux modes d'ordre 0 pour des films minces Air/Ag/Verre d'épaisseur 100, 50 et 25nm, pour la gamme de longueur d'onde 220-1880nm. Nous avons ainsi montré que ces modes étaient également accompagnés de 4 ensembles de modes d'ordre supérieur, dont les 3 premiers ordres ont été calculés et représentés précédemment.

Parallèlement à la recherche des différents modes propres du film mince, nous avons mené une réflexion sur les différents moyens d'exciter les modes obtenus quand cela est possible. Au vue de ces résultats, nous allons donc maintenant discuter les voies 'optiques' d'excitation possibles de ces différents modes propres. En effet, comme dans le cas mécanique évoqué en prélude de cette 3<sup>ème</sup> partie, les modes permettent de connaître les fréquences de résonance d'un système oscillant, nous allons maintenant discuter la réponse de ce même système à un forçage, i.e. sous l'effet d'un champ électromagnétique incident en régime harmonique. Nous évoquerons succinctement les facilités de mise en œuvre expérimentale, mais deux autres points nous intéresseront tout particulièrement : l'amplification du champ dû à la résonance et sa structure. En effet, lors de l'excitation résonante, il est possible d'obtenir des amplitudes d'ondes qui tendent vers des valeurs particulièrement grandes sans pour autant user d'un excitateur de forte puissance. Cette propriété remarquable due à la résonance permet de faciliter l'étude des effets non-linéaires associés au système, comme par exemple dans le cas de l'étude en régime non-linéaires des nano-cavités présentées précédemment. Nous verrons également dans notre cas qu'il est possible d'exciter, au moins localement des ondes avec des structures particulières i.e. avec des vecteurs d'ondes complexes comprenant parties réelle et imaginaire non-nulle. En effet, les modes propres calculés pour le film mince ont des vecteurs d'onde le plus souvent complexes et l'excitation résonante permet alors d'exciter de telles ondes avec des ondes purement radiatives.

## **VIII. Excitation Optique des plasmons-polaritons de surface**

L'optimisation de l'excitation des plasmons-polaritons de surface n'est pas un sujet d'étude récent. Depuis les travaux de Kretschmann-Raether (K-R) [Kretschmann68] et Otto [Otto68], il existe de nombreux travaux de recherche qui discutent cet aspect pour des structures simples ou complexes [Raether88],[Zayats05],[Maier07]. Nous nous intéresserons exclusivement aux structures planaires, continues ou non, et excitées en régime harmonique. Nous allons tout d'abord évoquer le cas de l'empilement planaire excité par une onde plane harmonique (K-R et Otto), puis nous inclurons l'effet de discontinuités dans cet empilement. Nous nous intéresserons tout particulièrement à la structure du champ excité au-dessus du film mince. Nous verrons ainsi comment il est expérimentalement possible d'obtenir une onde aux caractéristiques du mode de film mince. Cette partie tâchera de présenter les résultats de la façon la plus générale possible. Cependant, nous utiliserons les courbes obtenues pour un film d'argent de 50nm d'épaisseur pour illustrer nos remarques. Les courbes obtenues pour l'or, présentées dans l'Annexe B sont en fait très similaires. Tous les résultats pour un film mince d'argent d'épaisseur 50nm présentés dans ce paragraphe sont transposables au film d'or. Cependant, pour obtenir une analyse complète des différentes possibilités d'excitation optique pour d'autres métaux, l'étude des courbes de dispersion semblent nécessaires.

### **VIII.1. Structures planaires continues**

On évoque dans ce chapitre les configurations de Kretschmann-Raether (K-R) et d'Otto avec un prisme large, c'est-à-dire quant aucune arête du prisme n'est utilisée pour faire diffracter le faisceau incident. (La réalisation de cette dernière configuration, quand une arête du prisme sert à faire diffracter l'onde incidente sera évoquée dans le paragraphe VIII.2.b). En effet, nous allons voir que le but commun de ces deux techniques est d'obtenir une composante de vecteur d'onde  $k_x$  réelle qui est égale à celle du mode résonant dans le cas où celle-ci se trouve à droite de la courbe de lumière dans le milieu d'indice faible considéré. Nous allons commencer avec la configuration qui permet à priori l'excitation du mode d'interface unique, la configuration dite d'OTTO (Figure VIII-1). En effet, dans cette configuration, il est possible d'avoir une épaisseur de métal aussi grande que possible, considérant ainsi une interface unique. On ajuste alors à la surface du métal un prisme (représenté en bleu sur la Figure VIII-1) dont l'indice est supérieur à celui du milieu qui sépare le prisme et le métal.

### VIII.1.a. Configuration d'Otto

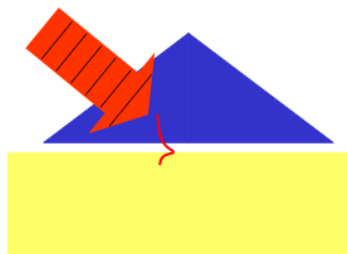


Figure VIII-1: Schéma de la configuration d'Otto

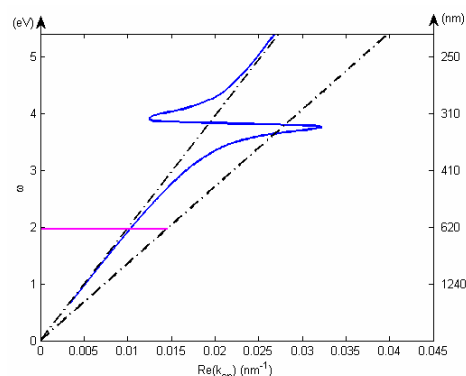


Figure VIII-2: Comparaison des composantes  $k_x$  radiatives à 632,8nm avec la courbe de dispersion des modes résonants d'une interface unique Ag/air

Sur la Figure VIII-2, on représente en bleu la courbe de dispersion du mode résonant d'interface Ag/air. On représente également les droites de lumière de l'air et du verre. La difficulté expérimentale de cette technique réside dans le fait que l'épaisseur d'indice faible entre le prisme et la surface de métal doit permettre le couplage entre l'onde incidente et le 'mode d'interface' à la longueur d'onde considérée. L'avantage de l'indice fort du prisme est de pouvoir obtenir à la surface du métal un vecteur d'onde  $k_x$  supérieur à celui d'une onde radiative dans le milieu d'indice faible (droite magenta à longueur d'onde fixée). On se place alors entre les deux droites de lumière, en réflexion totale interne dans le prisme. L'épaisseur du 'gap' d'indice faible qui sépare le prisme de la surface de métal doit être suffisamment mince pour permettre le couplage par effet tunnel de l'onde incidente avec la surface de métal. En ajustant l'angle d'incidence de l'onde, il est alors possible d'obtenir une composante de vecteur d'onde  $k_x$  qui égale la partie réelle de celle du mode de l'interface.

En fait, en considérant l'étude réalisée précédemment sur le film métallique, il est évident que dans cette configuration les modes résonants associés à l'interface métallique unique sont modifiés par la présence du prisme. C'est en fait un film mince diélectrique qui est étudié ici. Il est donc nécessaire de reprendre l'étude complète des modes d'un film d'indice faible, entouré cette fois par un milieu diélectrique semi-infini et un milieu métallique semi-infini.

### VIII.1.b. Configuration de Kretschmann-Raether

La configuration K-R permet d'étudier un film métallique de faible épaisseur. De plus, elle permet de s'affranchir du problème de contrôle de la distance prisme/interface métallique. On considère en fait le système suivant : un film métallique compris entre un indice fort et un indice plus faible. Dans le cas le plus classique, le substrat est le milieu d'indice fort dans lequel est envoyé l'onde incidente. On est alors dans la configuration du film mince asymétrique dont nous venons d'étudier les modes propres.

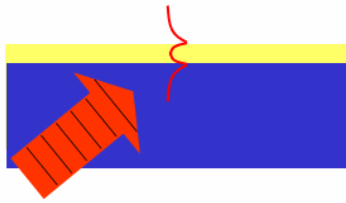


Figure VIII-3: Schéma de la configuration 'Kretschmann-Raether'

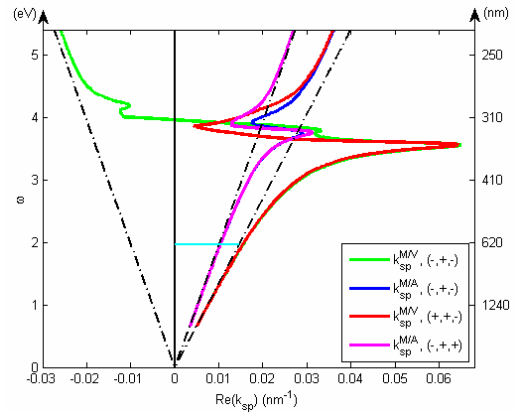
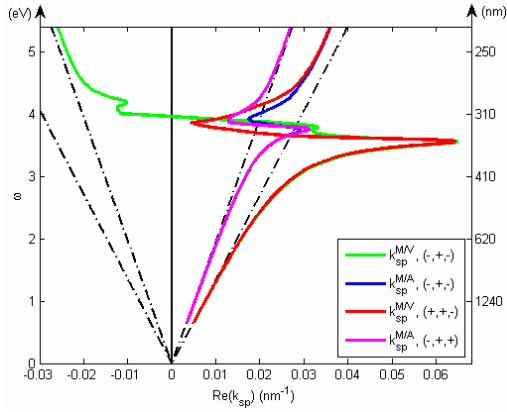
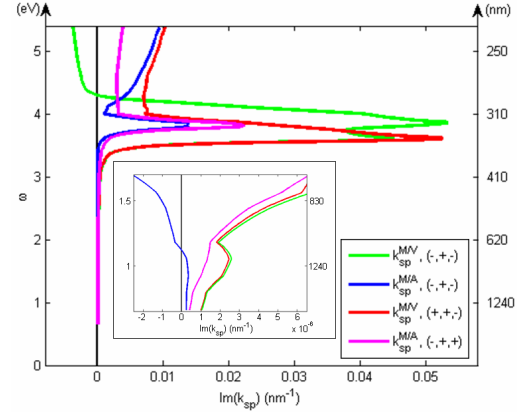


Figure VIII-4: Comparaison des composantes  $k_x$  radiatives à 632,8nm avec les courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  des modes résonants d'un film mince Air/Ag/Verre

Comme dans la configuration d'Otto, le fort indice du substrat permet d'obtenir une composante  $k_x$  réelle supérieure à celle du milieu d'indice faible du superstrat. Nous avons vu qu'il existe 4 modes résonants d'ordre 0 et différents modes d'ordres supérieurs. En ajustant l'angle du faisceau incident, suivant la longueur d'onde considérée, il existe donc plusieurs modes dont la composante  $k_x$  du vecteur d'onde peut être égalée par celle de l'onde incidente. Sans exactement exciter au pôle, il est donc possible d'entrer en résonance avec les modes dont la composante réelle  $k_x$  du vecteur d'onde est à gauche de la droite de lumière associée à l'indice fort. Cependant, dans cette configuration, comme dans la configuration d'Otto, la composante  $k_x$  du vecteur d'onde incident est purement réelle. Il n'est possible d'exciter au pôle un des modes propres du film que lorsque la partie imaginaire de celui-ci est nulle. Cette remarque implique qu'aucun mode d'ordre supérieur ne peut être excité au pôle dans cette configuration puisque ces modes ont des parties imaginaires positives non-nulles (Figure VII-62). De plus, avant de pouvoir conclure quant à leur possible excitation, il est nécessaire de vérifier les valeurs exactes des parties imaginaires de  $k_x$  des modes du film mince associés aux interfaces uniques, ainsi que les valeurs des composantes  $k_z$  dans chacun des milieux au voisinage du film.



**Figure VIII-5: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  des modes résonants d'un film mince Air/Ag/Verre d'épaisseur 50nm**



**Figure VIII-6: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  des modes résonants d'un film mince Air/Ag/Verre d'épaisseur 50nm**

On remarque alors que deux courbes présentent des parties imaginaires nulles sur la Figure VIII-6. Pour une épaisseur donnée et des longueurs d'onde données, les modes résonants peuvent alors présenter des composantes de vecteur d'onde  $k_x$  purement réelle.

Pour ne pas alourdir le raisonnement, nous allons nous concentrer sur la zone visible ( $\lambda > 350\text{nm}$ )/proche IR. Dans cette gamme de longueur d'onde, il est nécessaire de se mettre en réflexion totale interne pour équilibrer avec l'onde incidente la partie réelle de  $k_x$  du mode d'ordre 0. En effet, les modes calculés ont des valeurs comprises entre les deux courbes de lumière (zone accessible), ou à droite de la courbe de lumière associée à l'indice fort (zone inaccessible dans cette configuration). On se place donc en réflexion totale interne et la composante tangentielle du vecteur de l'onde incidente égale la composante réelle du mode propre résonant considéré (ensemble de solutions n°1 ou 3-a, respectivement en magenta et en bleu sur la Figure VIII-5 et la Figure VIII-6). Dans ce cas, au  $k_x$  réel incident correspond un triplet  $(k_{z1}^A, k_{zm}^A, k_{z2}^A)$  qui est utilisé pour calculer la valeur de la fonction  $D$ . Nous savons qu'il n'est pas nécessaire de préciser la détermination du signe de  $k_{zm}^A$  pour effectuer ce calcul, on omet donc volontairement cette composante. Avec cette configuration expérimentale, dans le milieu incident,  $k_{z2}^A$  est un réel pur strictement positif. On notera alors que  $k_{z2}^A$  du faisceau incident a une partie réelle positive non nulle et une partie imaginaire nulle  $k_{z2}^A \rightarrow (+, 0)$ . On est en réflexion totale interne et le champ ne peut pas diverger à l'infini.  $k_{z1}^A$  a donc une partie réelle nulle et une partie imaginaire positive  $k_{z1}^A \rightarrow (0, +)$ . De plus, on sait que dans ce milieu l'amplitude de l'onde incidente est nulle (on impose un unique excitateur au film).



- Cas de l'ensemble de solution n°3-a

Observons maintenant les courbes de dispersion de l'ensemble de solution n°3-a (Figure VII-41 à Figure VII-46). Dans cette gamme de longueur d'onde, la courbe de dispersion de la partie imaginaire du mode s'annule pour une longueur d'onde et une épaisseur donnée. Cette particularité en fait un bon candidat à l'excitation exacte d'un des modes résonant d'ordre 0 du film mince. Le fait que la composante  $k_x$  soit réelle correspond en effet exactement au cas de l'excitateur. On remarque que la structure du mode dans le milieu transmis est également celle de la configuration expérimentale, partie réelle nulle et partie imaginaire positive (0,+). Par contre, dans le milieu incident la composante  $k_{z2}$  du vecteur d'onde du mode propre résonant (-,0) ne coïncide pas avec la structure de l'excitateur (+,0). Ce n'est donc pas ce mode qui est résonant dans la configuration Kretschmann-Raether.

- Cas de l'ensemble de solution n°1

Si on se tourne maintenant vers l'ensemble de solutions n°1. On remarque que la partie imaginaire de la composante tangentielle du vecteur d'onde du mode résonant est très faible mais non-nulle.  $k_{z1}$  a une partie réelle faible, négative et une partie imaginaire positive,  $k_{z1} \rightarrow (0^-, +)$ . Cette valeur est très proche de celle de l'excitateur (0,+). Dans le milieu incident,  $k_{z2}$  a une partie réelle positive et une partie imaginaire faible, négative  $k_{z2} \rightarrow (+, 0^-)$ . Dans ce milieu également, sans coïncider exactement avec la configuration expérimentale, ce mode présente des caractéristiques très proches des ondes imposées par la configuration expérimentale. En configuration K-R, il est donc possible d'entrer en résonance avec les modes propres de l'ensemble de solution n°1. Mais cet ensemble ne présente à priori, pour aucune des épaisseurs et des longueurs d'onde calculées, de composante  $k_x$  résonante purement réelle. Il n'est donc pas possible d'obtenir une excitation au pôle avec une onde dont la composante tangentielle du vecteur d'onde est purement réelle, ce qui est le cas avec notre excitateur.

On remarquera alors également que le mode d'ordre 0 avec lequel l'onde excitatrice entre en résonance n'est pas un mode guidé. En effet, la partie imaginaire de la composante  $k_{z2}$  est négative, très faible mais non nulle.

▪ Angle de Brewster en configuration Kretschmann-Raether

Si on regarde plus en détail le coefficient de Fresnel de réflexion  $r_p$ , dans la configuration expérimentale, on sait que :

$$r_p(k_{z1}^A, k_{zm}^A, k_{z2}^A, d) = \frac{-D(k_{z1}^A, k_{zm}^A, k_{z2}^B, d)}{D(k_{z1}^A, k_{zm}^A, k_{z2}^A, d)}$$

Nous venons de voir que l'excitateur fixe la détermination des valeurs de la composante  $k_z$  dans chacun des milieux. Dans la configuration expérimentale présentée, le dénominateur de  $r_p$  ne peut pas s'annuler. Nous allons voir qu'il n'en va pas de même de son numérateur. En effet, on remarque que pour annuler le numérateur de  $r_p$ , on cherche cette fois un zéro de la fonction  $D$  tel que la composante  $k_{z2}$  soit réelle négative  $k_{z2}^B = -k_{z2}^A \rightarrow (-, 0)$ . Les autres composantes restant inchangées. Cette fois c'est bien l'ensemble de solution n°3-a qui correspond à la configuration expérimentale et qui permet d'annuler de manière exacte le numérateur du coefficient de réflexion. En effet, pour une longueur d'onde donnée et une épaisseur donnée, il existe dans cet ensemble une solution telle que la valeur de  $k_x$  est purement réelle. Il existe alors un angle tel que l'excitateur se trouve précisément à l'angle de Brewster du film mince. L'amplitude de l'onde réfléchie par le film est alors nulle à cet angle. Cependant, il est important de noter que les courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  des ensembles de solution n°1 et 3-a sont bien distinctes. Le minimum de réflexion d'une onde plane sur un film mince métallique n'implique donc pas nécessairement l'excitation optimale des modes résonants du film étudié.

La coïncidence de l'optimum de l'excitation du film et du minimum du coefficient  $r_p$  dépend donc de la proximité des composantes réelles du mode propre résonant du film mince et de l'angle de Brewster. On remarque alors sur la Figure VIII-4 que pour les grandes longueurs d'onde le minimum de réflexion observé en champ lointain donne une bonne approximation de l'angle incident qui permet d'exciter au mieux la résonance du film. En effet, les deux modes sont quasiment confondus. A  $\lambda=632,8\text{nm}$ , la différence entre les parties réelles des composantes  $k_x$  est de l'ordre de  $1,6 \times 10^{-6} \text{ nm}^{-1}$  pour un film d'argent de  $50\text{nm}$  d'épaisseur. Ce qui représente un écart en angle légèrement inférieur à  $0,01$  degré. De plus, dans le haut visible et les IR, comme la partie imaginaire du mode est très faible, la résonance est fortement marquée. L'onde de surface présente alors une nette amplification de son amplitude pour des angles d'incidence très proche du minimum de réflexion en champ lointain. Cependant, le décalage peut être plus important en fonction de :

- la longueur d'onde, à  $\lambda=543\text{nm}$ , l'écart est 2,5 fois plus important ( $3,9 \times 10^{-6} \text{ nm}^{-1}$ ) pour un film de même nature et de même épaisseur.

- la nature du métal, à  $\lambda=543\text{nm}$  pour un film d'or de  $50\text{nm}$  d'épaisseur, la différence est de  $1,8 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-1}$ , soit un écart en angle de l'ordre du degré ( $0,91^\circ$ ).

- de l'épaisseur du film, à  $\lambda=543\text{nm}$  pour un film d'or de  $25\text{nm}$  d'épaisseur, la différence est de  $5,3 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-1}$ , soit un écart en angle de plus de  $2,5^\circ$ .

Au minimum de réflexion en champ lointain ne correspond alors pas une amplification optimale du champ transmis. L'écart maximal observé entre ces deux phénomènes est supérieur à la dizaine de degré aux longueurs d'onde proches de la résonance plasma pour les métaux étudiés (argent et or). Aux longueurs d'ondes qui nous intéressent, la différence est plus importante dans le cas du film d'or que pour un film d'argent, il est par contre possible que d'autres matériaux présentent des différences encore plus marquées entre l'angle d'excitation résonante et l'angle de Brewster. L'étude complète des modes propres résonants du film considéré semble alors nécessaire pour conclure.

En conclusion, avec ces deux configurations : Otto et Kretschmann-Raether, on considère un film mince excité par une onde plane unique dont la composante  $k_x$  est purement réelle. Nous avons vu qu'il est possible d'entrer en résonance avec un ou plusieurs modes de l'interface ou du film métallique considéré, mais les structures de champ excitées ont des composantes  $k_x$  qui restent purement réelles. Par conséquent, les composantes  $k_z$  sont également purement réelles ou imaginaires.

Pourtant, avec un faisceau focalisé, qui peut être considéré comme une somme d'ondes planes, Dawson *et al* [Dawson01] ont montré que l'onde excitée sur le film mince subissait bien une atténuation associée à la partie imaginaire du mode calculé le long de l'interface. La composante tangentielle du vecteur de l'onde de surface excitée sur le film étant alors complexe et non pas réelle comme avec une onde plane unique. En fait, cette expérience est très similaire à celle réalisée avec une ou plusieurs discontinuités. Nous allons donc revenir sur cette configuration après avoir présenté l'excitation par des ondes planes uniques de structures discontinues. Pour ce type de configuration, l'utilisation d'un indice fort n'est pas nécessaire pour l'excitation de grandes composantes de vecteur d'onde  $k_x$ . L'excitation de la partie réelle des modes propres du système est basée sur la diffraction de l'onde incidente. Le phénomène de diffraction permet également d'exciter les modes propres situés à droite de la courbe de lumière de l'indice fort (ensemble de solution n°2 et 3-b) et qui étaient inaccessibles précédemment.

## VIII.2. Structures planaires discontinues

On présente dans ce chapitre une démonstration de principe de l'excitation des modes résonants de film mince par des structures planaires périodiques dans une direction de l'espace. On étudie ensuite le cas de la discontinuité unique. Nous discuterons alors la possible excitation des modes d'ordre 0 dans cette configuration. C'est cette structure qui a été choisie expérimentalement et sur laquelle nous allons par conséquent développer le plus longuement cette partie. Cette discontinuité unique nous le verrons, constitue le cas limite du réseau quand la période devient très grande. Dans chacun des cas, on s'intéressera tout particulièrement à la structure du champ excité au dessus du film métallique qui borde la ou les discontinuités.

### VIII.2.a. Cas de multiples discontinuités périodiques

On considère donc une onde plane incidente sur un réseau périodique de discontinuités. Dans cette configuration, l'onde incidente peut être envoyée depuis les deux milieux. Via le réseau, considéré comme infini, l'onde incidente excite alors une infinité d'ondes dont les composantes  $k_x$  des vecteurs d'onde sont évaluées à partir de la formule des réseaux  $k_x = k_0 \pm \alpha \frac{2\pi}{p}$  dans laquelle  $\alpha$  désigne un entier naturel. On considère

maintenant que le réseau jouxte un film mince métallique (Figure VIII-7). En supposant alors que les modes résonants du film bordant le réseau ne sont que très peu modifiés, on montre que l'on peut obtenir une excitation résonante de la partie réelle du vecteur d'onde  $k_x$  des différents modes (Figure VIII-8, avec  $\Delta k = \frac{2\pi}{p}$ ).

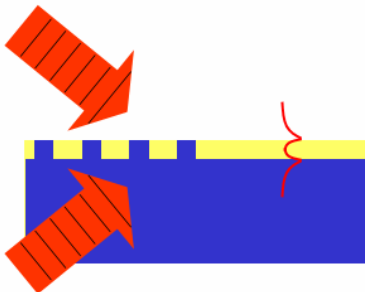


Figure VIII-7: Schéma de l'excitation des ondes résonantes de film mince avec un réseau

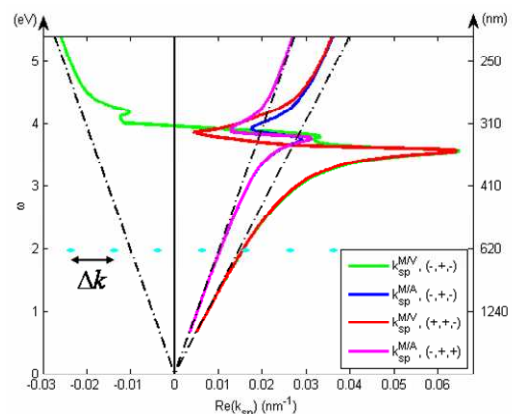
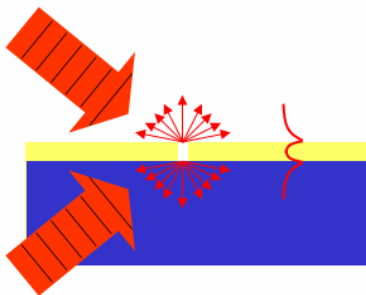


Figure VIII-8: Comparaison des composantes  $k_x$  excitées par un réseau avec les courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  des modes résonants d'un film mince Air/Ag/Verre (50nm)

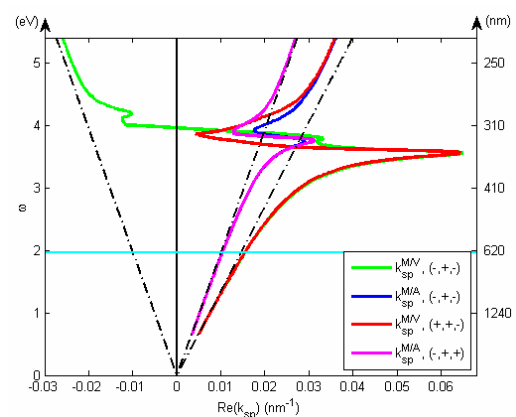
On remarque en effet que certains des vecteurs d'onde excités par le réseau sont à droite des deux courbes de lumière. Il est alors possible en ajustant l'angle d'incidence ou la période du réseau d'obtenir une excitation résonante de la partie réelle de la composante  $k_x$  calculée pour le mode. La mesure de l'onde se propageant le long du film présente une atténuation que l'on peut associer à la partie imaginaire du vecteur d'onde du mode résonant de l'interface [Verhagen06]. Ici, comme dans le cas du film mince continu avec un faisceau focalisé, l'onde résultante excitée le long du film par un grand nombre d'onde plane se comporte comme le ou les modes. Cette onde a en effet un vecteur d'onde tangent au film avec une partie réelle et une partie imaginaire qui sont associées au mode résonant d'ordre 0. En fait, pour le film mince, le réseau peut être considéré comme une discontinuité unique 'étendue'. On va maintenant lui comparer le cas de la discontinuité unique 'locale', représentée par le motif élémentaire du réseau.

### VIII.2.b. Cas de la discontinuité unique

On fait maintenant tendre la période 'p' du réseau vers des valeurs particulièrement grandes. On obtient ainsi une discontinuité locale unique au milieu du film mince (Figure VIII-9). On suppose également que la discontinuité est faiblement perturbative et que les modes du système peuvent être assimilés aux modes de film mince calculés. L'ensemble des vecteurs d'onde excités par la discontinuité est alors continu. Pour n'importe quel angle incident, les parties réelles des vecteurs d'onde résonants sont donc excitées. On perd cependant la possibilité d'utiliser les effets de résonance du réseau pour maximiser l'excitation d'un mode particulier sur le film mince [Devaux03],[Renger07].



**Figure VIII-9: Schéma de l'excitation des ondes résonantes de film mince avec une discontinuité unique**

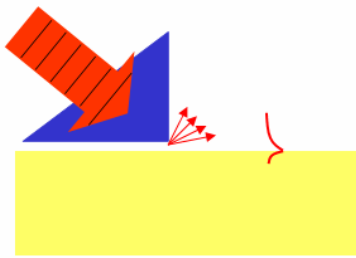


**Figure VIII-10: Comparaison des composantes  $k_x$  excitées par une discontinuité avec les courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  des modes résonants d'un film mince Air/Ag/Verre (50nm)**

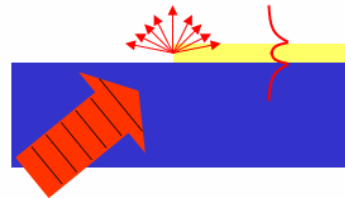
Dans cette configuration, l'onde incidente peut encore être envoyée depuis les deux milieux diélectriques. Dans ce cas, l'ensemble des vecteurs d'onde  $k_x$  excités par la

discontinuité est continu et permet d'exciter indistinctement les modes du film mince à droite et à gauche des différentes courbes de lumière. Une nouvelle fois, l'ensemble des vecteurs d'onde  $k_x$  réels excités permet d'obtenir une onde se propageant au dessus du film mince ayant un vecteur d'onde complexe [Wang09]. Les mesures montrent que si l'on s'écarte de la discontinuité pour pouvoir négliger les effets de diffraction, on mesure une onde dont les composantes sont associées au mode du film mince.

Cette méthode d'excitation est en fait très comparable à la configuration d'Otto quand une arête du prisme est utilisée pour faire diffracter le faisceau incident (Figure VIII-11) ou l'excitation par la marche d'un demi-film mince (Figure VIII-12).



**Figure VIII-11: Schéma de la configuration dite 'd'Otto' avec un demi-prisme**



**Figure VIII-12: Schéma de l'excitation des modes résonants d'un demi-film mince métallique**

Dans ces deux configurations (Figure VIII-11 et Figure VIII-12), la mesure des composantes du vecteur d'onde tangent des ondes résultantes excitées par la discontinuité sont associées aux modes propres de la structure continue. En utilisant un second prisme pour découpler l'onde de surface après propagation, il est effectivement possible de mesurer la décroissance associée au mode propre d'une interface unique dans la configuration présentée sur la Figure VIII-11 [Zizhin82]. Il est également possible d'associer au mode résonant du film mince la mesure champ proche optique de la partie réelle et imaginaire de l'onde excitée au-dessus d'un demi film mince [Salomon02].

Lors de l'utilisation de ces structures diffractantes, l'effet de la diffraction est essentiel à l'excitation résonante de la partie réelle du vecteur d'onde  $k_x$  des différents modes. De plus, les différentes mesures montrent que les ondes résultantes excités présentent en fait les caractéristiques complètes du vecteur d'onde résonant de la structure, i.e. partie réelle et partie imaginaire. Nous avons vu que l'excitation résonante du vecteur d'onde complexe du système résonant entraîne des amplitudes d'ondes 'excitées' qui tendent vers des valeurs arbitrairement grandes. Ce n'est vraisemblablement pas le cas ici. En fait, c'est l'excitation d'un grand nombre d'ondes sur le film métallique qui permet d'obtenir une onde résultante dont les composantes du vecteur d'onde peuvent être associées aux modes d'ordre 0 de la structure.

Il est également probable que l'onde résultante excitée à proximité de la discontinuité permette de mettre en avant les modes propres d'ordres supérieurs. Ces modes sont atténués très rapidement par la propagation le long du film, et ne sont donc pas prépondérants loin de la marche. Ainsi loin de la marche, l'onde générée a alors les caractéristiques du mode propre le moins atténué, le mode propre d'ordre 0.

L'étude de ces structures diffractantes sub-longueur d'onde a généré de nombreuses publications ces 10 dernières années [Lalanne09]. Pour comprendre au mieux les phénomènes mis en jeu, les études de nombreux motifs ont été réalisées ; marche métallique [Salomon02], fentes métalliques de profondeur finie [Seidel04],[Lévêque07],[Wang09] et infinie [Lalanne05], guide diélectrique entouré de métaux (Métal/ 'Insulator' /Métal, MIM et IMI) [Dionne06],[Bérini09]. Des études se sont également tournées vers l'association de deux [Schouten05],[Kalkum07] ou de plusieurs motifs [Radko08]. Ces différentes publications ont permis de mieux comprendre le phénomène de transmission optique exaltée dans les structures 'tamis à photons' [Ebbesen98],[Salomon01],[Lezec04],[Liu08].

Ces différentes études confirment en outre que les ondes résonantes excitées par les discontinuités peuvent être modélisées en première approximation par des combinaisons d'ondes dont les caractéristiques sont celles des modes propres de la structure continue. Dans la grande majorité des cas, les vecteurs d'onde résonants sont alors évalués à partir du vecteur d'onde résonant d'une interface unique. Cette observation, expérimentale et numérique, est confirmée par le calcul analytique du champ diffracté. Ce calcul permet également de mettre en avant la contribution des ondes de Sommerfeld au plus près de la discontinuité [Gravel08]. Cette contribution a été confirmée expérimentalement [Aigouy07] et numériquement [Kihm09].

La structure modale d'un film mince ( $\geq 50\text{nm}$ ), est plus complexe qu'on ne le suppose, ceci se trouve confirmé par les études sous 'illumination' particulières de tels films (présence de défaut localisé...[Salomon02],[Seidel04],[Sidorenko07]). Pour décrire les champs propagés le long de l'interface on doit alors faire appel à un jeu de modes spécifiques. Nous avons vu que le couplage des interfaces implique l'existence d'un grand nombre de mode. Les modes d'ordre supérieur ont une atténuation très importante qui limite probablement leur observation. Dans le cas de film mince, l'étude théorique présentée précédemment (paragraphe VII.2) a également mis en avant l'existence de 4 modes d'ordre 0 associés aux interfaces découplées. Pour ces faibles épaisseurs de film, les vecteurs d'ondes complexes ne peuvent plus être évalués par les vecteurs d'onde résonants des interfaces uniques. Dans le cas du film mince, nous avons vu quel est le mode d'ordre 0 résonant en configuration K-R. Mais dans le cas de discontinuités, la littérature ne nous a pas permis de connaître quels sont les modes d'ordre 0 excités. La partie expérimentale sera consacrée entre autre à l'étude de cette question (paragraphe IX.3.b). Nous allons maintenant nous intéresser au mode d'ordre 0 excité par une discontinuité à l'interface métal/verre.

▪ Excitation de l'onde résonante à l'interface métal/verre :

Nous avons vu que la discontinuité permettait d'exciter des vecteurs d'ondes dont les valeurs sont à droite de la courbe de lumière de l'indice le plus fort. Avant de conclure définitivement cette partie sur l'excitation optique des modes résonants par une discontinuité unique, nous allons chercher quel est le mode d'ordre 0 associé à l'interface métal/verre qui est excité dans cette configuration. Comme pour la réflexion sur l'excitation en configuration Kretschmann-Raether, nous allons nous appuyer sur les courbes de dispersion dont la présentation est la plus développée, celle du film d'argent.

Le mode excité doit correspondre à l'un des ensembles de solution associé à l'interface métal/verre. On se concentre donc maintenant sur les ensembles de solution numérotés 2 et 3-b. Pour entrer en résonance avec le mode, la valeur du vecteur d'onde  $k_x$  réel excité par la discontinuité doit être supérieur à la droite de lumière 'verre'. Dans les milieux diélectriques, les composantes  $k_z$  des vecteurs d'ondes sont donc imaginaires pures. Dans le milieu de l'onde incidente ( $n^{\circ}2$ ), comme le champ ne doit pas diverger à l'infini on suppose  $k_{z2}$  est imaginaire positif. Les deux ensembles de modes ont des valeurs de  $k_{z2}$  qui correspondent. Dans le milieu 1, on admet que le mode excité respecte la condition d'onde sortante. On notera donc que  $k_{z1}$  a une partie réelle nulle et une partie imaginaire positive  $k_{z1} \rightarrow (0, +)$ . L'ensemble de solution  $n^{\circ}2$  ne correspond pas à cette détermination de  $k_{z1}$ . C'est donc le mode d'ordre 0 de l'ensemble de solution  $n^{\circ}3-b$  qui est excité par la marche dans cette configuration expérimentale.

Comme il ne nous a pas été possible de confirmer expérimentalement ce raisonnement, nous avons décidé de confirmer cette analyse par la réalisation de simulations numériques. La méthode de simulation utilisée est appelée Méthode Différentielle. On présente ici uniquement les résultats obtenus. La méthode sera détaillée plus largement dans la partie IX.1.c et dans l'Annexe C.



### VIII.2.c. Etude numérique du mode résonant associé à l'interface métal/verre

La Méthode Différentielle permet de calculer l'amplitude complexe des ondes diffractées par un réseau. L'objectif de cette simulation est de mesurer avec précision la partie réelle de l'onde résonante excitée par la discontinuité unique. Nous avons donc cherché une longueur d'onde pour laquelle il existe une différence notable entre les parties réelles des composantes  $k_x$  des ensembles de mode 2 et 3-b, et une partie imaginaire faible. A  $\lambda=445\text{nm}$ , les modes résonants de films d'argent de 50 et 25nm sont de bons candidats. On calcul en fait la transmission d'un réseau de plots d'argent de période  $p=128\mu\text{m}$ . Le ratio de la largeur des plots d'or sur la période est de 1/2. Nous verrons qu'à cette longueur d'onde la période simulée permet de considérer que la réponse au bord du plot est représentative de la réponse d'un demi-film mince. Pour cette longueur d'onde et avec cette période, les deux marches du plot sont en effet bien découplées. Nous avons réalisé ces simulations pour deux épaisseurs de marches différentes (50 et 25nm). Le faisceau incident à  $\lambda=445\text{nm}$  est envoyé en polarisation p depuis le milieu d'indice fort ( $\varepsilon = 1.458^2$ ) avec un angle de  $50^\circ$  par rapport à la normale de l'échantillon. On trace sur la Figure VIII-13 les modules complexes des  $n'$  ondes transmises en fonction du vecteur d'onde normalisé de l'onde. On observe alors 2 résonances pour chaque épaisseur (A, -A et B, -B, respectivement pour le film de 50 et 25nm d'épaisseur).

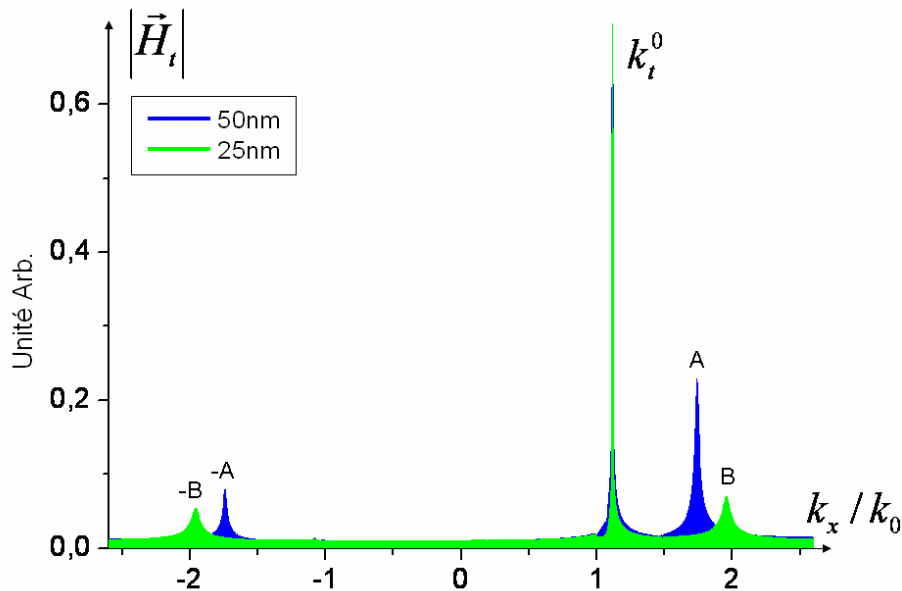


Figure VIII-13: Module de l'amplitude complexe des ondes diffractées par des marches d'argent de 50 et 25nm d'épaisseur, éclairées par une onde plane à  $\lambda=445\text{nm}$   $\theta=50^\circ$

On remarque également sur la Figure VIII-13 le pic de transmission lié au faisceau incident noté  $k_t^0$ . A et -A, ainsi que B et -B sont répartis de manière symétrique par rapport à l'origine de l'axe des abscisses. Ces résonances sont associées au mode d'ordre 0 obtenus

pour l'interface métal/verre. On mesure les valeurs de  $k_x$  associés aux résonances notées A et B. Les valeurs sont répertoriées et comparées aux valeurs calculées pour un film mince continu de même épaisseur dans le Tableau VIII-1.

	Epaisseur du film (nm)	Valeur numérique mesurée pour le plot d'or (nm <sup>-1</sup> )	Valeur calculée pour un film continu (nm <sup>-1</sup> )	Ecart relatif
Ensemble de solution n°2	50	2,454x10 <sup>-2</sup>	2,435x10 <sup>-2</sup>	7,7 ‰
	25	2,764x10 <sup>-2</sup>	2,516x10 <sup>-2</sup>	89,7 ‰
Ensemble de solution n°3-b	50	2,454x10 <sup>-2</sup>	2,456x10 <sup>-2</sup>	0,8 ‰
	25	2,764x10 <sup>-2</sup>	2,762 x10 <sup>-2</sup>	0,7 ‰

**Tableau VIII-1 : Comparaison de la partie réelle de la composante  $k_x$  des ondes résonantes excitées par des marches d'argent de 50 et 25 nm avec les valeurs calculées pour les modes propres d'ordre 0 de film d'argent continu de même épaisseur**

L'incertitude de mesure liée à la discrétisation des calculs numériques effectués est de 2 ‰. Seules les valeurs obtenues dans le cas de l'ensemble n°3-b sont inférieures à cette valeur. Les valeurs obtenues dans le cas de l'ensemble n°2 sont bien supérieures. Ces résultats confirment donc sans ambiguïté que les vecteurs d'ondes résonants associés à l'interface métal/verre excités sur le demi-film mince sont associés au mode propre d'ordre 0 de l'ensemble de solution n°3-b.

Nous allons maintenant revenir à l'excitation du film mince continu. Cette fois l'excitateur n'est pas une onde plane unique mais un ensemble d'ondes planes comme dans l'expérience réalisée par Dawson *et al* [Dawson01]. Dans ce cas précis, on définit la fonction  $A_0(k_x)$  qui représente la décomposition en ondes planes du faisceau incident. En discrétisant cette fonction, nous allons reconstituer analytiquement l'intensité du champ transmis en configuration K-R sur un film d'argent de 200nm.

### **VIII.3. Structure planaire continue excitée par un spectre d'ondes planes**

Dans cette partie, nous avons choisi de travailler avec un faisceau incident représenté par une répartition gaussienne d'ondes planes. La répartition est centrée sur le vecteur d'onde  $k_0$  définit par son angle d'incidence. Le spectre complet contient  $2 \times 50 + 1$  ondes planes. On répartit les  $2 \times 50$  ondes de part et d'autre du vecteur d'onde  $k_0$  avec un pas de discrétisation  $\Delta k = \frac{2\pi}{p}$ ,  $p = 300 \mu m$ . Cette discrétisation impose au champ transmis une périodicité de  $300 \mu m$ . On effectue de manière analytique le calcul du champ magnétique exact transmis au dessus du film mince pour chacune des ondes. On somme ensuite les différents champs obtenus pour calculer l'intensité transmise. Sur les Figure VIII-14 a,b,c&d on représente l'intensité du champ magnétique transmis au-dessus d'un film asymétrique Air/Ag/Verre de 200nm d'épaisseur pour différents angles d'incidence du faisceau incident. Pour cette épaisseur, les vecteurs d'onde résonants du film peuvent être approximés aux vecteurs d'onde résonants des interfaces uniques. Le spectre du faisceau incident est représenté à droite des images de l'intensité calculée et systématiquement comparé à la valeur du module au carré du coefficient de transmission (Figure VIII-15 a,b,c&d).

Si le champ transmis varie faiblement quand l'angle d'incidence est loin de l'angle d'excitation résonante (Figure VIII-14 a&b), on observe clairement l'effet de la mise en résonance quand l'angle d'incidence est proche ( $\sim$ quelques degrés) de l'angle d'excitation résonante. Nous allons également voir que pour une même répartition d'onde  $A_0(k_x)$  le champ transmis évolue de manière très différente en fonction de l'angle d'incidence.

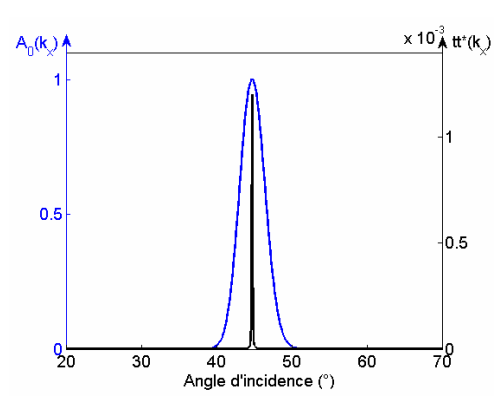
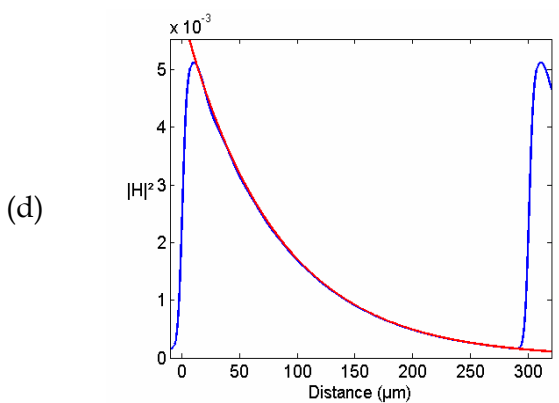
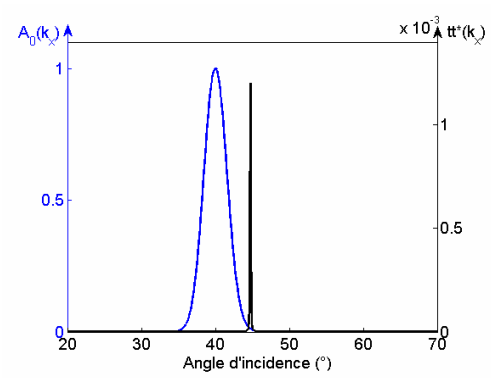
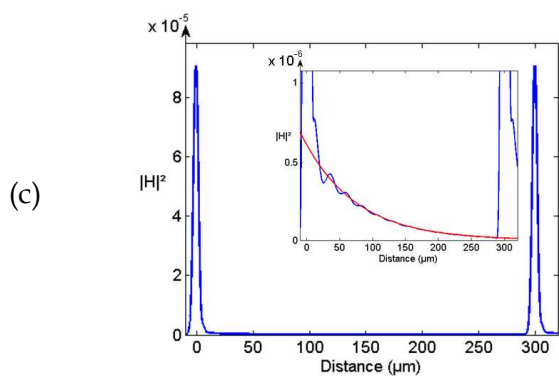
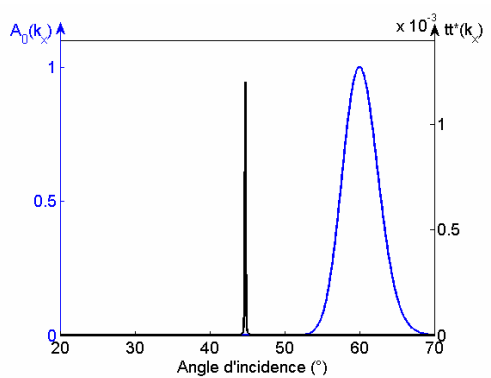
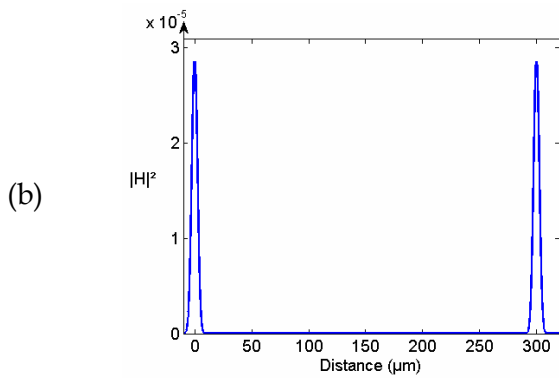
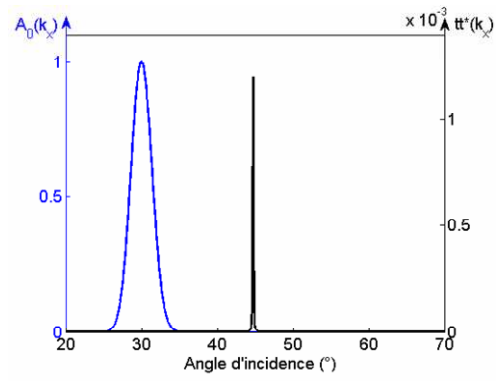
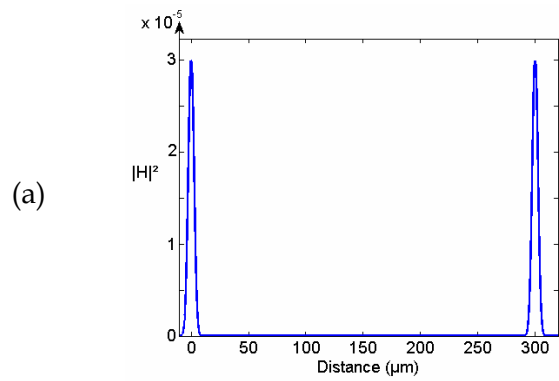
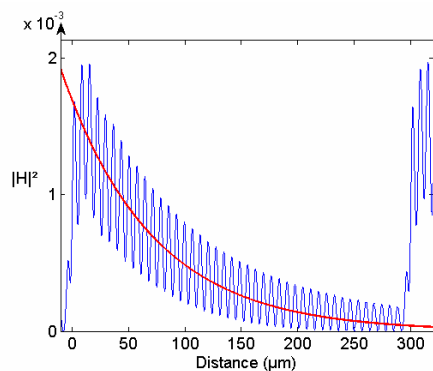


Figure VIII-14 a,b,c & d: Intensité transmise au dessus du film mince pour un faisceau de décomposition  $A_0(k_x)$  centré sur un angle d'incidence de  $30^\circ$ (a),  $60^\circ$ (b),  $40^\circ$ (c) et à  $\theta_{sp}$  (d)

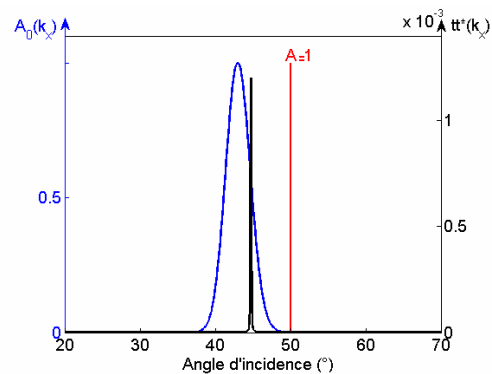
Figure VIII-15 a,b,c & d: Comparaison de la répartition d'ondes planes incidentes  $A_0(k_x)$  avec l'amplitude au carré du coefficient de transmission

On observe en effet sur les Figure VIII-14 a&b la localisation du faisceau transmis. Le champ est très rapidement atténué au dessus du film. Quand  $A_0(k_x)$  est non nulle aux valeurs où le coefficient de transmission du film présente une résonance, on observe que le champ au dessus du film présente une longueur de décroissance égale à celle du mode d'interface (courbe en rouge sur les Figure VIII-14 c&d). Dans le cas où le recouvrement entre  $A_0(k_x)$  et la résonance du coefficient de transmission est faible, la décroissance est déjà notable (zoom sur la Figure VIII-14-c) mais l'amplitude du champ associé reste très faible. Quand l'angle d'incidence du faisceau coïncide avec la résonance du coefficient de transmission (Figure VIII-14-d) on observe alors nettement la forte augmentation de l'amplitude du champ transmis et la décroissance associée au mode propre de l'interface. Dans ce cas, la mesure de l'intensité du champ permet de remonter à la partie imaginaire de la composante  $k_x$  du mode d'ordre 0 de l'interface métal/air.

Sur la Figure VIII-16 on ajoute une onde plane supplémentaire. Comme précédemment, le choix d'un angle d'incidence pour la répartition d'onde proche de l'angle d'excitation résonante permet de mesurer la partie imaginaire de la composante  $k_x$  du mode d'ordre 0 de l'interface métal/air. L'onde plane supplémentaire interfère avec l'onde résultante excitée par l'ensemble des ondes envoyées précédemment. Connaissant la composante  $k_x$  du vecteur d'onde de l'onde plane supplémentaire envoyée dans cette configuration, la période des oscillations observées permet de mesurer la partie réelle de la composante  $k_x$  de l'onde résultante. La valeur obtenue est également celle du mode propre d'ordre 0 associé à l'interface métal/air.



**Figure VIII-16: Intensité transmise au dessus du film mince pour un faisceau de décomposition  $A_0(k_x)$  centré sur l'angle d'excitation résonant  $\theta_{sp}$**



**Figure VIII-17: Comparaison de la répartition d'ondes planes incidentes  $A_0(k_x)$  avec l'amplitude au carré du coefficient de transmission**

Pour conclure, on note que lorsque le recouvrement entre  $A_0(k_x)$  et la résonance du coefficient de transmission n'est pas nul, l'onde résultante excitée au-dessus du film permet de mesurer les caractéristiques du mode le moins atténué. Cette observation est confirmée pour les films moins épais. Les modes calculés associés à l'ensemble de solution n°1

permettant bien de modéliser les oscillations et la décroissance de l'intensité calculée sur le film mince continu.

L'excitation d'une onde résultante aux caractéristiques des modes résonants du film mince est donc possible sans discontinuités si l'excitateur n'est pas une onde plane mais constitué d'un ensemble d'ondes planes. Nous avons vu que dans ce cas, l'amplitude du champ excité, si il présente bien une amplification ne tend pas vers des valeurs infinies. De plus, dans le cas d'une structure diffractante (discontinuité unique locale) ou dans le cas d'un film mince excité par un faisceau représenté par un spectre d'onde plane, l'étude de la fonction  $A_0(k_x)$  semble particulièrement intéressante. La modulation de cette fonction peut permettre de faciliter ou non l'observation d'un mode résonant particulier. Nous avons également vu que dans le cas ou une onde incidente supplémentaire est envoyée sur la structure, l'intensité du champ observé au dessus du film mince permet de mesurer la partie imaginaire et la partie réelle du vecteur d'onde du mode résonant.

Les mesures expérimentales qui vont suivre sont réalisées avec des structures diffractantes. Dans ce cas, de façon analogue au cas présenté sur la Figure VIII-16, l'onde incidente interagit directement avec la diffraction engendrée par la discontinuité. La fonction  $A_0(k_x)$  représentant dans ce cas la diffraction due à la marche unique. Nous verrons si il est possible de mesurer la partie réelle et imaginaire du mode résonant le moins atténué en observant en champ proche la structure du champ au dessus du film mince. Nous espérons que la comparaison des structures de champ observées aux courbes de dispersions calculées nous permettra d'affiner notre connaissance des modes excités par la discontinuité locale.

Dans un premier temps, nous avons souhaité étudier une structure très proche du film mince ; une fente unique dans un film métallique. Nous avons donc réalisé des mesures sur des fentes uniques de dimension sub-longueur d'onde gravées dans un film mince métallique. Ces mesures seront suivies par la présentation de la méthode de simulation numérique qui a été utilisée afin de modéliser au mieux les différentes structures étudiées.

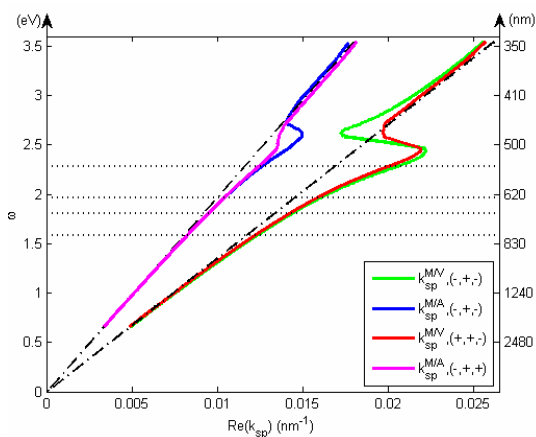
Dans un deuxième temps, nous sommes revenus sur une structure déjà étudiée au sein du laboratoire, la marche métallique unique. Nous étudierons cette structure pour deux épaisseurs de marches différentes (50 et 25nm).

Pour la marche de 50nm, qui présente un couplage faible des deux interfaces métal/diélectrique, nous avons tout d'abord réalisé une série de mesure en fonction de l'angle d'incidence du faisceau excitateur. Nous avons ensuite réalisé des mesures en fonction de la longueur d'onde. Ces mesures seront confrontées aux courbes de dispersion calculées dans le cas d'un film mince continu afin de comparer ces modes résonants à l'onde résultante excité par la discontinuité.

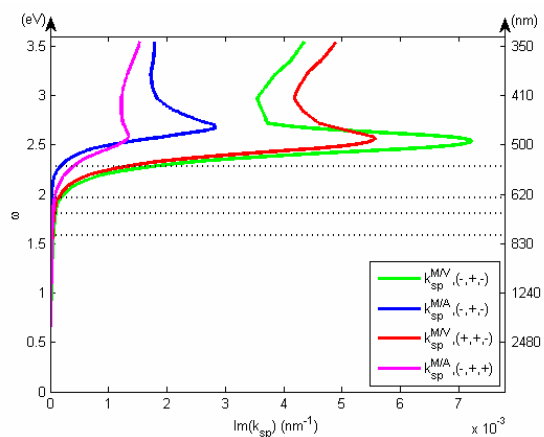
Enfin, nous présenterons les résultats obtenus pour différentes longueurs d'onde sur un film de très faible épaisseur pour lequel il existe un couplage fort des deux interfaces.

## IX. Etude expérimentale des modes résonants de films minces métalliques

Avant de commencer, on présente succinctement les courbes de dispersion d'un film d'or de 50nm d'épaisseur. Comme nous l'avons évoqué, la résonance associée au plasmon de volume et de surface est moins marquée pour ce métal que pour l'argent. On représente également en pointillés les différentes longueurs d'onde de travail qui seront utilisées (543, 632,8, 685 et 785nm). Le modèle d'indice utilisé pour le métal est basé sur les valeurs données dans [Johnson&Christy72].



**Figure IX-1: Courbes de dispersion de la partie réelle du vecteur d'onde  $k_x$  des modes propres d'un film mince verre/Au/air (50nm)**



**Figure IX-2: Courbes de dispersion de la partie imaginaire du vecteur d'onde  $k_x$  des modes propres d'un film mince verre/Au/air (50nm)**

Pour cette épaisseur, quelque soit la longueur d'onde de travail à notre disposition, les parties réelles des vecteurs d'onde des différents modes associés à une même interface sont peu différents (Figure IX-1). Les parties imaginaires des vecteurs d'onde présentent quant à elles de fortes variations en fonction de la longueur d'onde (Figure IX-2). A priori, les modes résonants attendus sont les modes des ensembles de solutions n°1 et 3-b. Mais nous ne savons pas si la discontinuité ne permet pas d'exciter les autres modes du film mince, ni même si les modes (partie réelle et imaginaire) calculés pour le film mince continu constituent une bonne approximation des modes propres résonants excités par la discontinuité sur le demi-film quand les interfaces sont couplées.

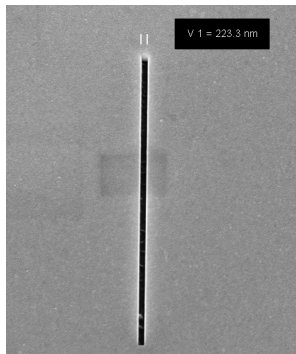
Comme dans le cas de l'argent, les modes d'ordre supérieur pour les films d'or ont des parties imaginaires beaucoup plus importantes aux différentes longueurs d'onde de travail. Je me permets donc de répondre à une première interrogation, aucune mesure n'a été associée à ces modes. Il est très probable que la forte absorption de ces modes limite leur observation au plus près de la marche.

Nous allons maintenant commencer cette partie avec la présentation de l'étude réalisée sur des fentes uniques de différentes largeurs.

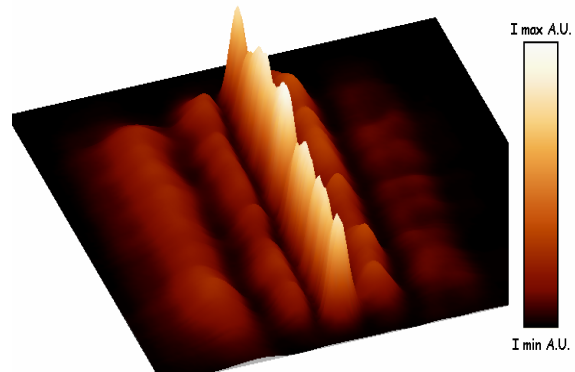
## IX.1. Etude réalisée sur des fentes sub-longueur d'onde

### IX.1.a. Configuration expérimentale

L'échantillon étudié lors de cette première étude expérimentale est un ensemble de fentes métalliques uniques de largeur 100, 200 et 300nm (Figure IX-3). Les fentes sont réalisées dans un film d'or de 200nm d'épaisseur sur un substrat en verre ( $n=1.458$ ). Une couche de chrome de 5nm est déposée pour permettre l'accroche du film d'or. Les dépôts ont été réalisés successivement dans un unique bâti d'évaporation par effet Joule par T. Charvolin au laboratoire SiNaPS du pôle Minatec au CEA Grenoble. La gravure des fentes a été réalisée au FIB par K. Foubert sous la direction de J. Beerens au laboratoire CRN2 de l'engineering université de Sherbrooke. Les fentes mesurent  $10\mu\text{m}$  de long. Pour cette première étude, le faisceau incident est envoyé en incidence normale par rapport au plan de l'échantillon. On dispose des résultats pour trois lasers de longueurs d'onde 543, 685 et 785nm. Cependant, nous n'avons pas réalisé les mesures sur la fente de 300nm avec le laser à 543nm. Les faisceaux gaussiens de chacun des lasers mesurent entre 3 et 5mm de diamètre. On contrôle la polarisation incidente en mode TE (champ  $\vec{E}$  perpendiculaire aux fentes) à l'aide d'un polariseur visible. Grâce au jeu des différentes largeurs de fentes et des différentes longueurs d'onde disponibles, le ratio de la longueur d'onde sur la largeur de fente s'étale entre  $\frac{\lambda}{2,2}$  et  $\frac{\lambda}{7,8}$ . On réalise des images champ proche en asservissement shear-force ( $\sim 5\text{nm}$ ) (Figure IX-4).



**Figure IX-3: Image MEB d'une fente métallique ( $\sim 220\text{nm} \times 10\mu\text{m}$ ) réalisée dans un film de 200nm d'épais**



**Figure IX-4: Représentation de l'intensité électromagnétique mesurée en champ proche à  $\lambda=685\text{nm}$  aux abords d'une fente de 100nm**

La Figure IX-4 représente l'intensité du champ électrique captée par la sonde à  $\lambda=685\text{nm}$  en champ proche aux abords d'une fente de 100nm de large pour  $10\mu\text{m}$  de long. On note clairement les variations d'intensité dans le sens de la longueur de la fente. Nous pensons que ces variations sont dues à une résonance du champ dans le sens de la longueur à l'intérieur de la fente. Il est en effet probable qu'une longueur de  $10\mu\text{m}$  des fentes ne permette pas de les considérer comme infinies translationnelles. Malgré une légère



dissymétrie au niveau de l'intensité, on observe une diminution symétrique de l'intensité mesurée de part et d'autre de la fente. Cette structure a été observée à un facteur d'échelle près pour toutes les longueurs d'onde et toutes les largeurs de fente testées. On enregistre également les images de l'intensité collectée au-dessus des fentes pour des hauteurs de 400, 800, 1200, 1600 et 2000nm. Il est ainsi possible de reconstituer une 'image' de l'évolution du champ électromagnétique aux abords de chacune des fentes.

### IX.1.b. Observations expérimentales

On représente les résultats obtenus pour les différentes hauteurs sur les figures suivantes ; Figure IX-5, Figure IX-6, Figure IX-7 et Figure IX-8. On compare avec la Figure IX-6 et la Figure IX-8 le résultat obtenu pour les fentes de 100 et 300nm à  $\lambda=685\text{nm}$ . Les mesures sur les fentes de 200nm à  $\lambda=543\text{nm}$  (Figure IX-7) et 100nm à  $\lambda=785\text{nm}$  (Figure IX-5) permettent de comparer les enregistrements pour le plus faible et le plus fort rapport  $\frac{\lambda}{w}$  disponible lors de cette étude (avec  $w$  la largeur de fente).

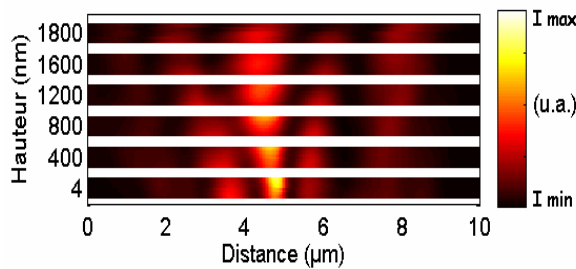


Figure IX-5: Reconstitution de l'intensité optique mesurée au-dessus d'une fente de 100nm à  $\lambda=785\text{nm}$

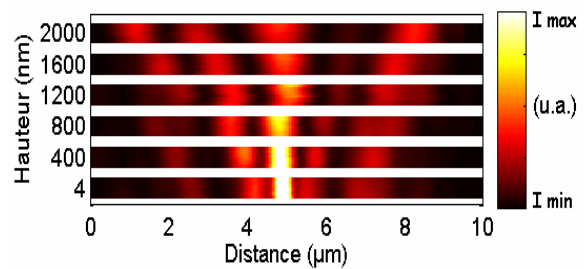


Figure IX-6: Reconstitution de l'intensité optique mesurée au-dessus d'une fente de 100nm à  $\lambda=685\text{nm}$

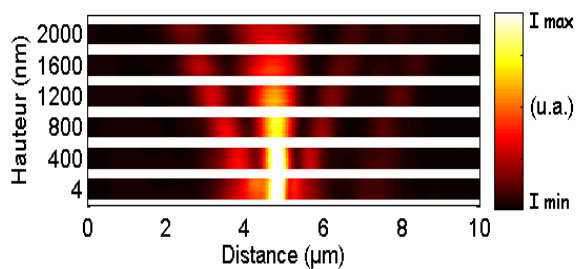


Figure IX-7: Reconstitution de l'intensité optique mesurée au-dessus d'une fente de 200nm à  $\lambda=543\text{nm}$

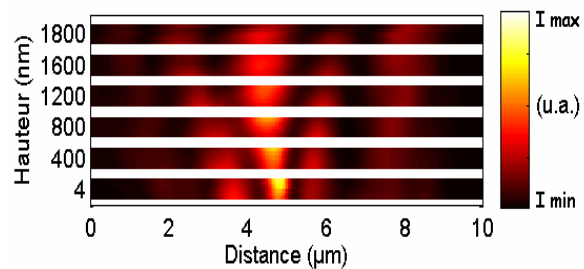
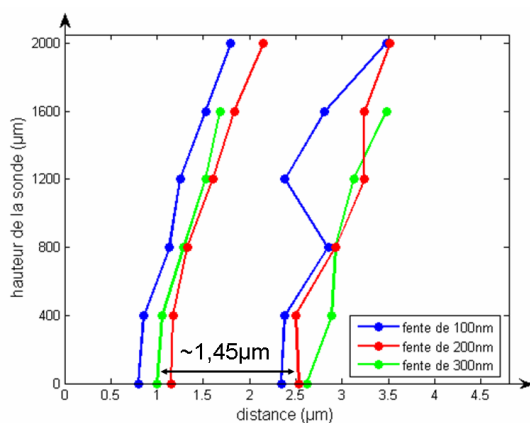


Figure IX-8: Reconstitution de l'intensité optique mesurée au-dessus d'une fente de 300nm à  $\lambda=685\text{nm}$

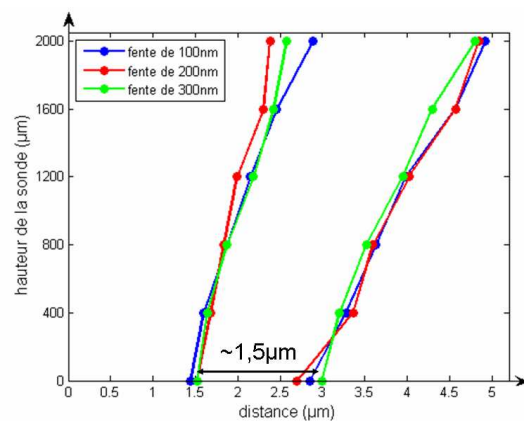
Avec ces différents enregistrements on remarque les similitudes dans l'évolution de l'intensité optique mesurée dans les différents cas de figure, des plus forts aux plus faibles rapports  $\frac{\lambda}{w}$ . Au centre de chacune des reconstitutions, on observe le pic principal dû au

signal transmis par la fente. Sur chacun des côtés, on observe des interférences entre les différentes ondes diffractées par la fente. Aucune dissymétrie n'a été observée sur l'échantillon. Les dissymétries de champ observées sont donc provoquées, au moins en partie par la dérive intrinsèque du banc d'expérience, et par un possible défaut angulaire de l'alignement du faisceau incident.

On reporte pour les différentes hauteurs de mesures des écarts entre les premiers maxima de chaque côté du pic central. Sur la Figure IX-9 et la Figure IX-10 on a reporté la distance mesurée entre les différents maxima observés aux abords de la fente gravée dans le film métallique (en  $x=0$ ). Les distances des premiers et seconds maxima sont moyennés sur les valeurs mesurées de chaque côté de la fente. Si les mesures sont bruitées à 685nm, notamment pour la fente de 100nm, les mesures à 785nm paraissent plus reproductibles.



**Figure IX-9: Position des premiers maxima d'intensité mesurés à  $\lambda=685\text{nm}$**

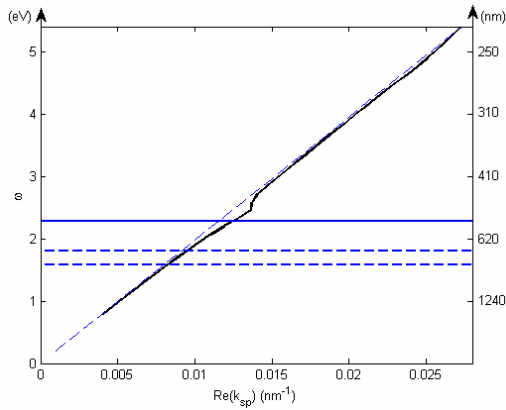


**Figure IX-10: Position des premiers maxima d'intensité mesurés à  $\lambda=785\text{nm}$**

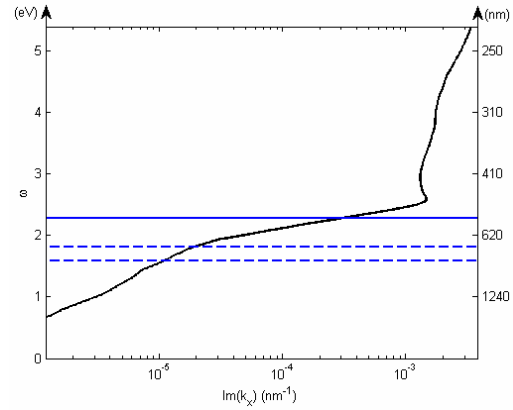
On observe donc que les structures de champ sont très similaires pour les différentes tailles de fentes à  $\lambda=685$  et  $785\text{nm}$  (Figure IX-9 et Figure IX-10). La structure du champ mesuré ne dépend que très faiblement de la largeur de la fente, nous verrons si les simulations confirment cette observation.

Au contact de l'échantillon ( $\sim 5\text{nm}$ ), les périodes observées dans chacun des cas peuvent être associées à l'interférence entre les modes résonants des deux interfaces découplées;  $1,45\mu\text{m}$  pour  $1,29\mu\text{m}$  calculé à  $685\text{nm}$  et  $1,50\mu\text{m}$  pour  $1,55\mu\text{m}$  calculé à  $785\text{nm}$ .

A  $\lambda=543\text{nm}$ , la structure est également similaire pour les deux fentes testées, mais un seul pic est observé de manière claire. Les pics suivants sont très peu marqués. Cette longueur d'onde est en fait très proche de la résonance plasmon de surface de l'or (Figure IX-11 et Figure IX-12). On a représenté sur ces figures la courbe de dispersion associée à une interface unique Au/air. On représente également en traits discontinus les longueurs d'onde à  $685$  et  $785\text{nm}$ , et en trait plein la longueur d'onde  $\lambda=543\text{nm}$ .



**Figure IX-11: Courbe de dispersion de la partie réelle du vecteur d'onde  $k_x$  des modes propres d'une interface Au/air**



**Figure IX-12: Courbe de dispersion de la partie imaginaire du vecteur d'onde  $k_x$  des modes propres d'une interface Au/air**

On remarque sur la Figure IX-12 que la partie imaginaire tracée en échelle logarithmique présente en fait une valeur au moins 10 fois plus importante à 543nm qu'aux autres longueurs d'onde testées. Cette forte augmentation implique une longueur de propagation du mode résonant 10 fois moindre à 543nm ( $\sim 3\mu\text{m}$ ) qu'à 685nm ( $\sim 30\mu\text{m}$ ). L'étalement du champ à la surface du film métallique associé aux ondes de surface plasmonique doit en conséquence être moins important aux abords des fentes.

### IX.1.c. Méthode de simulation numérique

La méthode de calcul utilisée se base sur la Méthode Différentielle (MD) développée à l'origine pour réaliser la modélisation de l'interaction d'ondes électromagnétiques avec des réseaux de diffraction [Nevière03]. Le code utilisé (S-Matrix+Remarque de Li) a été développé au sein du laboratoire par L. Salomon. La MD, dont le principe est plus détaillé dans l'Annexe B permet de calculer les amplitudes complexes des ondes réfléchies et transmises par le réseau simulé. Il est alors possible de reconstruire le champ électromagnétique de l'ensemble du système. Nous allons également étudier le module des amplitudes complexes associé à la partie réelle des vecteurs d'onde des ondes diffractées par la structure et calculées par la MD.

Comme les échantillons à modéliser sont aperiodiques, il est nécessaire de définir la période des réseaux simulés de telle manière qu'ils permettent d'approximer les simulations de champs réalisées aux champs associés à des fentes uniques. On réalise donc les calculs pour de très grandes périodes en prenant soin de s'assurer que les effets de résonance dus à la périodicité du motif de base sont négligeables. Il est donc nécessaire dans notre cas de s'assurer que le recouvrement du champ associé aux plasmons propagatifs 'lancés' depuis l'une des fentes et ceux contra-propagatifs 'lancés' par sa plus proche voisine modifie peu la structure du champ observé.

Si il est possible de négliger en champ proche le couplage des fentes dû au réseau, la reconstitution du champ lointain observé, principalement affecté par les modes radiatifs, prend clairement en compte l'effet réseau de l'échantillon. On se concentrera donc sur les observations réalisées en champ proche, au plus près de la fente en gardant en mémoire la possible interférence des modes de surface propagatifs et contra-propagatifs. Pour finir le nombre de modes utilisés pour simuler le champ transmis et réfléchi par la structure est optimisé en fonction de la convergence des coefficients en énergie de transmission et de réflexion (T,R) en champ lointain. Le nombre de modes utilisés lors des simulations est défini pour obtenir une convergence des coefficients de transmission et de réflexion dont la variation par rapport à un nombre de modes double est inférieur à 5%.

Remarque : Expérimentalement, nous ne savons pas interpréter l'effet de la sonde sur le champ collecté. La sonde collecte majoritairement le champ électrique dans le plan de l'échantillon, mais les images réalisées sont liées à l'intensité globale du champ électrique à la surface de l'échantillon. La sonde réalise en fait un couplage des différentes composantes du champ présent. Lors des expériences numériques, en polarisation 'p' c'est le champ magnétique qui est calculé, le champ électrique pouvant ensuite être obtenu via les équations de Maxwell.

Pour comparer expériences et simulations, nous avons choisis de ne pas spéculer sur l'effet de la sonde. On considère donc que l'intensité collectée expérimentalement est directement proportionnelle à l'intensité du champ magnétique calculé.

## IX.1.d. Observations numériques

### IX.1.d.i. Observations numériques dans l'espace direct

Nous avons donc obtenu la reconstitution de l'intensité liée au champ  $H_y$  au-dessus des fentes de différentes dimensions pour les différentes longueurs d'onde de travail. La Figure IX-13 présente le champ diffracté par une fente 'unique' de 200nm dans un film d'or de 200nm d'épais, éclairée à  $\lambda=685\text{nm}$  en incidence normale.

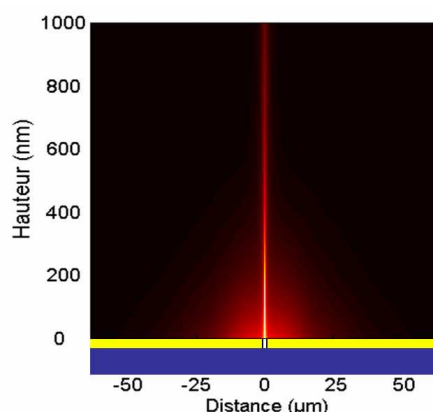


Figure IX-13: Représentation de l'intensité liée au champ  $H_y$  diffracté par une fente 'unique' de 200nm dans un film d'or de 200nm d'épaisseur, éclairée en incidence normale à  $\lambda=685\text{nm}$

L'amplitude de champ varie en fonction de la longueur d'onde de travail, mais la structure du champ diffracté est très similaire quelque soit la largeur de la fente étudiée. En  $x=0$ , on observe la transmission 'directe' par la fente du faisceau incident. On remarque également, de part et d'autre de la fente l'étalement du champ lié aux ondes de surface plasmoniques excitées par la diffraction de la fente (Figure IX-14). On compare sur cette figure les coupes de l'intensité obtenues pour les différentes longueurs d'onde de travail à 10nm au-dessus d'un film de 200nm d'épaisseur, coupé par une fente de 200nm de large.

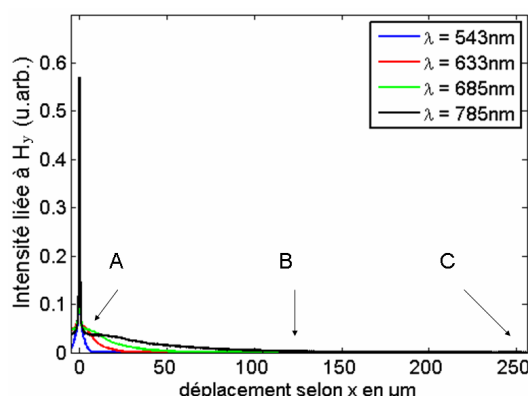
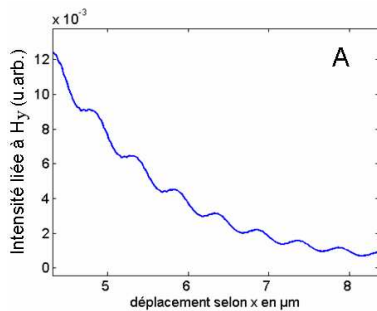


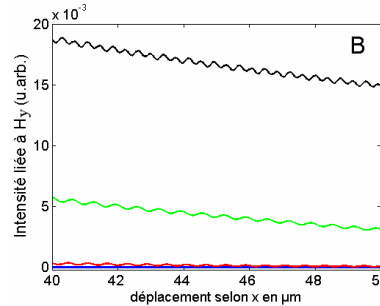
Figure IX-14: Comparaison des coupes de l'intensité liée au champ  $H_y$  diffracté par une fente de 200nm dans un film d'or de 200nm d'épaisseur, éclairée en incidence normale aux différentes longueurs d'onde de travail. Les coupes sont réalisées à 10nm de hauteur au-dessus du film.

On confirme le très faible étalement du champ à  $\lambda=543\text{nm}$ . L'étalement du champ est d'autant plus important que la partie imaginaire du vecteur d'onde du mode est faible

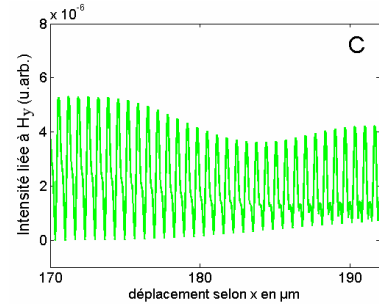
( $L = \frac{1}{k_{sp}}$ ). Plusieurs 100<sup>aines</sup> de microns de périodes sont nécessaires pour que le champ devienne négligeable aux grandes longueurs d'onde simulées. Nous avons réalisé plusieurs essais de période pour découpler les fentes aux différentes longueurs d'onde. En plus de la confirmation champ lointain de l'absence de l'effet réseau sur la transmission des différentes fentes, on mesure les oscillations fines modulant l'intensité du champ calculé pour savoir si le recouvrement du champ diffracté par les fentes peut être négligé ou non. Les mesures sont réalisées près de la fente (~quelques  $\mu\text{m}$ , noté A sur la Figure IX-14), à une distance équivalente au quart de la période simulée (noté B sur la Figure IX-14) et à une distance égale à la moitié de la période (noté C sur la Figure IX-14). Les mesures sont réalisées sur dix périodes pour minimiser l'incertitude. On représente sur la Figure IX-15, la Figure IX-16 et la Figure IX-17 différents zooms numériques permettant de mesurer les périodes d'interférences modulant l'intensité du champ diffracté par la fente de 200nm.



**Figure IX-15: Zoom de l'intensité optique en A pour  $\lambda=543\text{nm}$**



**Figure IX-16: Zoom de l'intensité optique en B**



**Figure IX-17: Zoom de l'intensité optique à la mi-période pour  $\lambda=685\text{nm}$**

Avant de discriminer les ondes impliquées dans les différentes modulations de champ observées, on récapitule dans le Tableau IX-1 les différentes périodes mesurées sur les coupes d'intensité en fonction de la période du réseau et de la longueur d'onde simulée.

$\lambda$ (nm)	Période du réseau (p en $\mu\text{m}$ )	$L_p$ ( $\mu\text{m}$ )	$p/L_p$	Périodes mesurées en nm		
				(A)	(B)	(C)
543	128	3,2	$\sim 40$	516	531	545
632,8	128	13,9	$\sim 9$	600	612	330
632,8	256	13,9	$\sim 18$	608	599	605
685	384	31,7	$\sim 12$	660	663	659 (361)
785	512	81,4	$\sim 6$	389	386	384

**Tableau IX-1 : Récapitulatif des interférences mesurées sur les coupes de l'intensité liée au champ  $H_y$  diffracté par une fente de 200nm dans un film d'or de 200nm d'épaisseur, éclairée en incidence normale**

Les périodes mesurées sont de l'ordre de la période ou de la demi-période de la longueur d'onde considérée. Pour connaître les ondes mises en jeu dans les différentes modulations, on se base sur un modèle d'interférence de 3 ondes. Les différentes ondes pouvant interférer ici sont représentées par la transmission directe du faisceau incident ( $\vec{H}_0 e^{ik_0 x}$ ) et les plasmons-polaritons de surface ( $\vec{H}_{sp+} e^{ik_{sp} x}$  et  $\vec{H}_{sp-} e^{-ik_{sp} x}$ ) lancés de part et d'autre des fentes. On considère qu'il n'existe qu'une seule fente bien que le plasmon contra-propagatif soit présent. Comme le plasmon contra-propagatif est excité depuis la fente voisine (à une distance égale à la période  $p$  de la fente considérée), on notera  $\vec{H}_{sp-} e^{-ik_{sp}(x-p)}$ . Pour connaître les différentes valeurs de modulation attendues entre deux fentes, on calcule l'intensité du champ  $H_y$  de la façon suivante  $I_{Hy} = (H_0 e^{ik_0 x} + H_{sp+} e^{ik_{sp} x} + H_{sp-} e^{-ik_{sp}(x-p)}) \times cc$  où 'cc' désigne le complexe conjugué. On obtient alors les différents termes suivant :

$$\begin{aligned}
I_{Hy} = & |H_0|^2 + |H_{sp+}|^2 e^{-2k''_{sp} x} + |H_{sp-}|^2 e^{-2k''_{sp}(p-x)} \\
& + H_0 H_{sp+} e^{-k''_{sp} x} \cos((k_0 \sin(\theta) - k'_{sp})x) \\
& + H_0 H_{sp-} e^{-k''_{sp}(p-x)} \cos((k_0 \sin(\theta) + k'_{sp})x - k'_{sp} p) \\
& + H_{sp+} H_{sp-} e^{-k''_{sp} p} \cos((2k'_{sp})x - k'_{sp} p)
\end{aligned}$$

Le terme de la 1<sup>ère</sup> ligne représente la valeur moyenne de l'intensité du champ. Les termes de la 2<sup>ème</sup> et la 3<sup>ème</sup> ligne sont respectivement associés à l'interférence entre l'onde transmise et l'onde plasmonique excitée par la fente et la première fente voisine. Enfin, le terme sur la 4<sup>ème</sup> ligne est associé à l'interférence entre les ondes résonantes de surface propagatives et contra-propagatives.

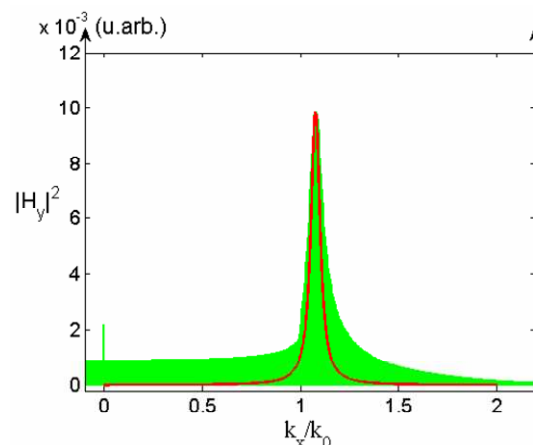
Les différentes périodes d'interférences sont calculées avec la formule suivante  $\Lambda = 2\pi / |\Delta k|$ , dans laquelle  $\Delta k$  représente la différence entre les composantes réelles des vecteurs d'onde considérés. Sachant que  $k_{sp}$  est très légèrement supérieur à  $k_0$  on peut calculer les périodes associées aux différents termes de  $I_{Hy}$ . Près de la fente, lorsque  $\theta$  est faible (ici  $\theta = 0$ ), la période associée au 1<sup>er</sup> terme doit être légèrement inférieure à  $\lambda$ . Mais pour que les fentes soient découplées, il est nécessaire que les termes associés aux interférences avec le plasmon contra-propagatif ne soient pas observés. En effet, si la période  $p$  est assez grande, ou si  $k''_{sp}$  est important, le facteur  $e^{-k''_{sp} p}$  permet de négliger ces interférences. Si ce n'est pas le cas, la période associée à l'interférence des ondes plasmoniques observée est de l'ordre de  $\lambda/2$ . Les périodes d'oscillations observées permettent donc de conclure ou non sur le couplage des fentes. On remarque dans le Tableau IX-1 que les fentes ne sont donc pas découplées pour les périodes simulées à 632,8 ( $p=128\mu\text{m}$ ) et 785nm. Dans ces cas précis, le rapport entre la période simulée et la longueur de propagation du plasmon est trop faible ( $p/L_p < 12$ ). A 685nm par contre seules quelques périodes à l'extrémité de la fenêtre de simulations sont associées au recouvrement du champ associé aux plasmons-polaritons de surface. On considère alors que le champ au plus près de la fente peut être approximé au champ diffracté par une fente unique ( $p/L_p \sim 12$ ). A 543nm,

quand la longueur de propagation du plasmon-polariton de surface est faible ( $\sim 3\mu\text{m}$ ) et à  $632,8\text{nm}$  pour une période de  $256\mu\text{m}$ , les fentes sont bien découplées. Nos capacités de calcul ne nous permettant pas d'augmenter encore la période de simulation, les fentes ne peuvent pas être découplées pour  $\lambda=785\text{nm}$ .

Avec cette étude, nous avons donc défini dans l'espace direct comment l'observation des périodes de modulation permet d'évaluer le couplage des fentes. Nous avons vu que pour des périodes suffisamment grandes le recouvrement de champ dû à la périodicité de la méthode peut être négligé. On considère alors que le champ obtenu peut être approximé à celui d'une fente 'unique'.

#### IX.1.d.ii. Observations numériques dans l'espace des k

Il est également intéressant d'observer directement le module des 'n' ondes complexes diffractées par la structure et calculés par la MD. Dans le cas de résonance, les vecteurs d'onde associés présentent une amplification. En effet, sur la Figure IX-18, on compare le pic de résonance obtenu avec une fonction lorentzienne centrée sur la partie réelle du vecteur d'onde résonant de l'interface Au/Air et une largeur à mi-hauteur égale à deux fois la partie imaginaire du vecteur d'onde résonant de l'interface Au/Air [Nevière03].



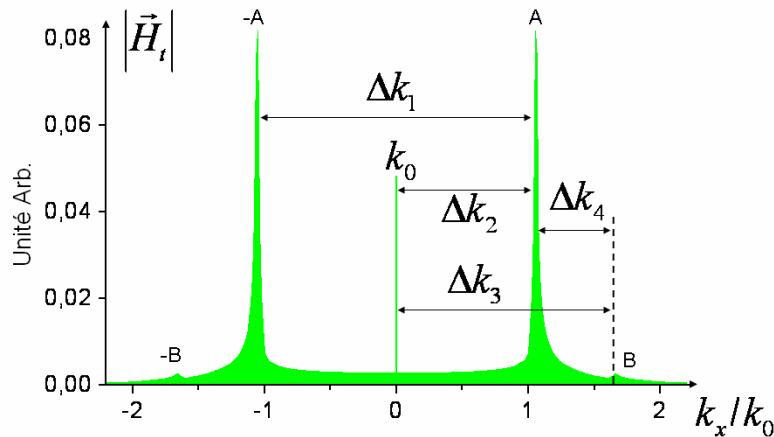
**Figure IX-18: Amplitude des modules complexes des 'n' ondes diffractées par une fente unique de 200nm dans un film d'or de 200nm d'épaisseur, éclairée en incidence normale à  $\lambda=685\text{nm}$**

On remarque alors le bon accord entre les valeurs réelles du vecteur d'onde résonant obtenu analytiquement avec la simulation. Par contre, la largeur à mi-hauteur du pic, associée à la partie imaginaire du vecteur d'onde résonant, n'est pas modélisée avec un bon accord par la valeur calculée pour le vecteur d'onde résonant du film métallique continu de 200nm d'épaisseur. On se limitera par conséquent à l'analyse des parties réelles des vecteurs d'onde résonants.

Sur la Figure IX-19, on trace les amplitudes complexes des 'n' ondes diffractées par un réseau de fente de 200nm dans un film d'or de 100nm d'épaisseur. Le faisceau est en incidence normale et la période simulée est de  $50\mu\text{m}$ . Avec cette faible période, on obtient un



couplage important des différentes ondes associées aux modes d'ordre 0 de l'interface métal/air (résonances notée A et -A).



**Figure IX-19: Module de l'amplitude complexe des ondes diffractées par un réseau de fente de largeur 200nm, espacées de 50µm dans un film d'or de 100nm d'épaisseur**

La faible épaisseur du film permet également d'observer les résonances associées aux modes d'ordre 0 de l'interface métal/verre (B et -B). On remarque également l'amplitude du faisceau incident transmis ( $k_0$ ). Dans ce cas, il existe plusieurs ondes qui vont interférer dans l'espace direct.  $\Delta k_1$  représente l'écart de vecteur d'onde entre les ondes résonante notées A et -A. Une période d'environ  $\lambda_{sp}/2$  ( $\sim \lambda/2$ ) est obtenue avec cet écart  $\Delta k_1$ . Nous avons défini que l'observation de ces ondes implique un couplage des motifs élémentaires (dans ce cas, la fente n'est pas 'unique').  $\Delta k_2$  représente l'écart de vecteur d'onde entre le faisceau incident et l'onde résonante notée A. La période associée à cette interférence est d'environ  $\lambda$ . Ce sont donc les deux périodes d'interférences sur lesquels se base notre analyse du couplage des motifs élémentaires du réseau. Finalement  $\Delta k_3$  et  $\Delta k_4$  représentent respectivement les interférences entre le mode d'ordre 0 de l'interface métal/verre et le vecteur d'onde de l'onde incidente et les interférences entre les deux modes d'ordre 0 qui sont mesurable lorsque l'épaisseur est suffisamment faible.

Un retour à l'étude expérimentale de ces fentes uniques nous paraît maintenant important. En effet, lors des observations réalisées, les oscillations les plus fines, de l'ordre de la longueur d'onde, qui sont dues à l'interférence du faisceau transmis et de l'onde résonante de surface n'ont pas été observées. Il est par conséquent nécessaire de réaliser des images plus précises permettant l'observation de ces interférences. De plus, comme nous allons le voir, la modification de l'angle d'incidence du faisceau excitateur permet de faciliter la mesure des vecteurs d'onde résonants en adaptant les périodes d'interférences à observer. Pour optimiser ces mesures, il serait également bénéfique de s'affranchir des effets de résonance observés et attribués à la dimension finie de la longueur des fentes, même si bien sûr l'étude de ces résonances n'est pas à négliger.

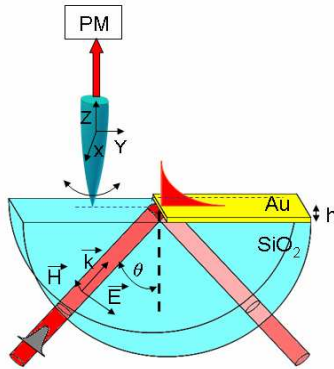
Lors de cette étude, nous avons donc comparé l'intensité du champ obtenue numériquement pour les différentes largeurs de fentes aux différentes longueurs d'onde. Nous avons pu confirmer numériquement les faibles modifications (aux valeurs d'amplitudes près) du champ diffracté par les fentes en fonction de leur largeur. Nous avons pu attribuer les structures périodiques observées numériquement à l'interférence entre les différents PPS présents. Dans le cas des épaisseurs simulées et mesurées, les valeurs des parties réelles des vecteurs d'onde calculées pour les modes résonants des interfaces uniques permettent de donner une bonne approximation des valeurs obtenues numériquement. Nous avons également vu que pour les différentes longueurs d'onde, les écarts d'étalement du champ peuvent être particulièrement importants. Ces fortes variations devront être prises en compte pour la réalisation des études expérimentales et numériques suivantes.

Nous allons maintenant nous concentrer sur l'étude de la 'demi-fente', i.e. la marche unique. Nous avons vu que cette structure a des effets similaires quand à l'excitation des modes résonants. Une meilleure connaissance des effets diffractifs de ce système nous permettrait également en rapprochant deux structures similaires couplées en vis-à-vis de revenir à l'étude des fentes de largeurs très variables. De plus la réalisation de marches métalliques est technologiquement plus simple à réaliser que les fentes de dimensions sub-longueur d'onde. Il est ainsi possible d'obtenir des marches de plusieurs millimètres de long qui peuvent être considérées comme infinies translationnelles. Une étude sur des structures similaires avait été réalisée au sein du laboratoire par L. Salomon et al [Salomon02]. Dans cette étude, les auteurs ont observé expérimentalement l'interférence entre le faisceau incident et le mode plasmon associé à l'interface métal/air excité pour des angles supérieurs à l'angle critique. Les simulations présentées dans ce papier précisent qu'à l'angle d'excitation résonante du plasmon métal/air, l'interférence entre le mode d'interface métal/verre et le faisceau incident est observable dans l'espace direct, prédiction que Seidel et al [Seidel04] ont confirmé expérimentalement. Les différents modes opératoires de ces expériences limitant respectivement ces observations aux angles supérieurs à l'angle critique et à l'angle d'excitation résonante. L'étude préliminaire montrant que l'interférence entre l'onde incidente et les modes résonants d'interface étaient également observables en incidence normale, nous avons décidé de prolonger ces études aux angles d'incidences inférieurs à l'angle critique.

Dans un premier temps, nous avons étudié un film mince d'épaisseur suffisante pour pouvoir négliger le couplage entre les deux interfaces sur la partie réelle du vecteur d'onde résonant. Nous avons donc réalisé une étude angulaire pour une longueur d'onde donnée, suivie d'une étude spectrale permettant de comparer les parties réelles et imaginaires des vecteurs d'onde résonants mesurés aux vecteurs d'onde calculés pour un film mince continu. Nous avons ensuite réalisé des mesures permettant une comparaison des vecteurs d'onde résonants de la structure pour une épaisseur de film qui ne permet pas de négliger ces effets de couplage. Avant de rapporter les résultats obtenus, nous allons présenter en détail le protocole expérimental.

## IX.2. Protocole expérimental pour l'étude de marches métalliques uniques

Nous souhaitons donc étudier en champ proche la distribution du champ électromagnétique au dessus de demi-films minces d'or. Pour cette étude nous avons souhaité pouvoir éclairer l'échantillon en face arrière, pour différents angles d'incidence et différentes longueurs d'onde. Le schéma de la configuration expérimentale est représenté sur la Figure IX-20.



**Figure IX-20: Représentation schématique de la configuration expérimentale**

Les échantillons ont été réalisés par T. Charvolin du laboratoire SiNaPs, au sein du pôle MiNaTec du CEA Grenoble. Différentes épaisseurs d'or sont déposées sur des lames rondes de quartz SUPRASIL de 1mm d'épaisseur et 1cm de diamètre. Une marche de résine est tout d'abord réalisée par lithographie optique. On dépose ensuite le métal et on termine par un 'lift-off' de la résine. Les dépôts métalliques sont réalisés en deux étapes successives dans le même bâti. Une première couche d'accroche de chrome est déposée (~5nm), suivie du dépôt d'or (25 ou 50nm). Au final, la lame de quartz SUPRASIL présente une surface à moitié recouverte d'or, créant ainsi une marche unique au centre de l'échantillon. La tête de balayage SNOM et l'échantillon sont placés en vis-à-vis sur une plaque solidaire qui peut être mise en rotation pour modifier finement l'angle d'incidence du faisceau excitateur. L'angle ainsi formé entre la normale à l'échantillon et le faisceau incident est noté  $\theta$ . Pour permettre un contrôle optimal de l'angle d'incidence, la platine de rotation est équipée d'un vernier qui permet un ajustement de l'angle d'incidence avec une précision de l'ordre de la minute d'arc et le prisme hémisphérique sur lequel on pose l'échantillon est évidé de l'épaisseur de la lame de quartz SUPRASIL pour limiter la surépaisseur due à l'échantillon. Tous les faisceaux sont préalablement alignés sur un seul axe, lui-même aligné sur l'axe de rotation de l'ensemble tête-échantillon à la hauteur de la sonde champ proche. On dispose pour ce montage de 4 lasers de longueurs d'onde différentes  $\lambda=543, 632,8, 685$  et  $785\text{nm}$ . Tous ont des puissances moyennes de 5 à 35mW. Un ensemble de miroirs permet la mesure aux différentes longueurs d'onde sans modifier l'angle d'incidence. Enfin, on contrôle la polarisation des faisceaux incidents avec des polariseurs (IR et visible) et une lame  $\frac{\lambda}{2}$  adaptée qui permet une rotation de la polarisation sans variation de l'intensité incidente.

### IX.3. Marche unique : interfaces 'quasi-découplées'

#### IX.3.a. Etude en fonction de l'angle d'incidence

##### IX.3.a.i. Observations expérimentales

Dans un premier temps, nous avons donc étudié un demi-film mince d'épaisseur suffisante pour pouvoir négliger le couplage entre les deux interfaces dans la détermination théorique de la partie réelle du vecteur d'onde résonant. La configuration expérimentale permet théoriquement une excitation avec un angle de  $\pm 90^\circ$  par rapport à la normale de l'échantillon. Mais les conditions expérimentales font que les angles d'incidence utilisés s'étalent en fait entre  $30$  et  $60^\circ$ . Nous nous sommes tout d'abord concentrés sur la mesure des périodes d'interférences mesurées pour différents angles d'incidence à  $632,8\text{nm}$ . Cette mesure permet d'estimer les parties réelles des ondes interférant avec le faisceau incident. La marche étant considérée comme infinie dans le sens de l'arrêt, les images enregistrées sont en général rectangulaires. On enregistre plusieurs lignes qui peuvent être moyennées (au minimum 32), pour 256 ou 512 points/ligne, mais pas une image entière ( $256\text{points}\times 256\text{lignes}$ ). On procède d'abord à l'enregistrement systématique d'une image de grande dimension centrée sur la marche d'or.

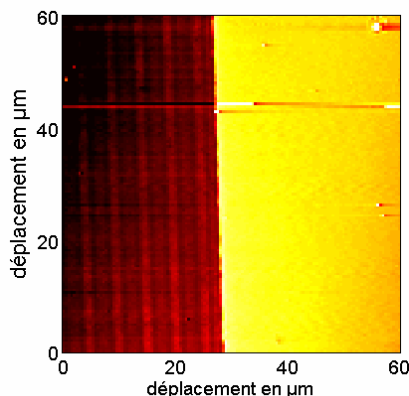


Figure IX-21: Image topographique ( $128\times 128$ ) globale ( $60\times 60\mu\text{m}^2$ ) de la marche d'or étudiée

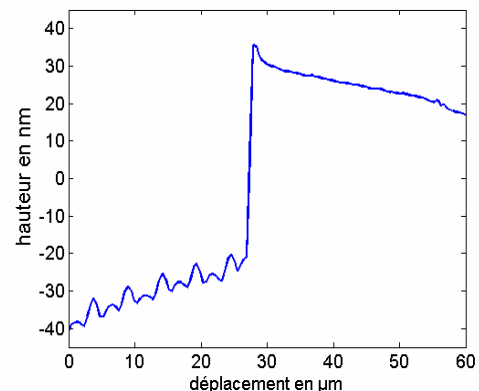
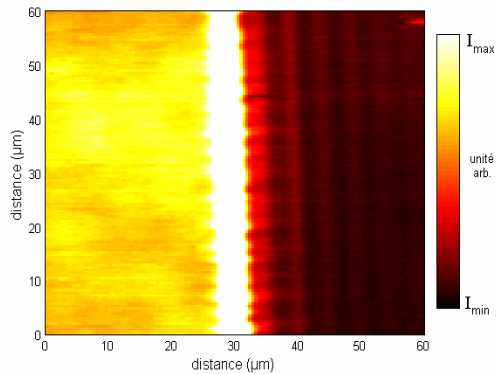


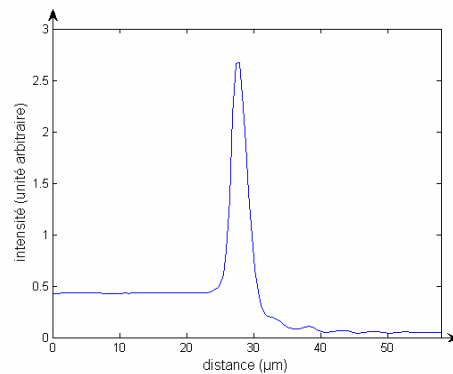
Figure IX-22: Coupe moyennée de l'image topographique de la marche d'or étudiée

Pour atténuer les distorsions de la surface dues au déplacement de la sonde, le plan affine moyen de l'image topographique sur la Figure IX-21 a été rattrapé. Les pentes observées sur la coupe associée sont dues au déplacement pendulaire de la sonde et aux déformations non-linéaires des céramiques piézo-électriques (Figure IX-22). Cette image permet en tout premier lieu de valider la propreté de la marche et du film métallique. Sur la zone diélectrique de l'échantillon, on observe une modulation de la surface moyenne d'environ  $8\text{nm}$ . Cette modulation qui respecte les spécificités constructeur, est peut-être due à un polissage de la lame de quartz SUPRASIL ou aux différentes étapes de fabrication de la marche métallique. L'image générale permet également de connaître avec une bonne précision l'épaisseur du film métallique étudié. L'image optique brute obtenue

simultanément permet de comparer grossièrement les différentes structurations de champ sur le substrat et la zone métal (Figure IX-23 et Figure IX-24).

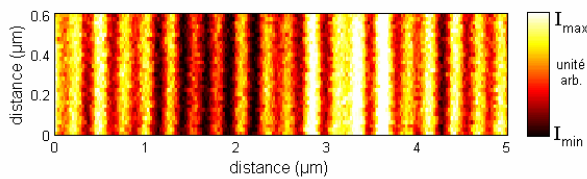


**Figure IX-23: Image optique (128×128) brute enregistrée sur une marche d'or,  $\lambda=632,8\text{nm}$ ,  $\theta=55^\circ$**

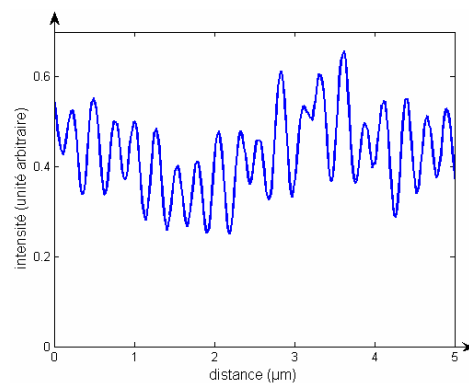


**Figure IX-24: Coupe moyennée de l'intensité optique mesurée**

Il est ensuite possible de venir 'zoomer' dans chacune des deux zones de l'échantillon (diélectrique et métallique) pour réaliser des images de dimensions adaptées aux différentes périodes de modulations de l'intensité. Dans le cas de faibles périodes de modulation de l'intensité mesurée, on réalise alors des images de dimensions inférieures. On améliore ainsi la capacité du microscope à imager les modulations de faible période. Le pas de discrétisation du champ mesuré est en effet défini par le rapport de la dimension de l'image par le nombre de points. Un exemple de zoom sur la partie diélectrique de l'échantillon est présenté sur la Figure IX-25.



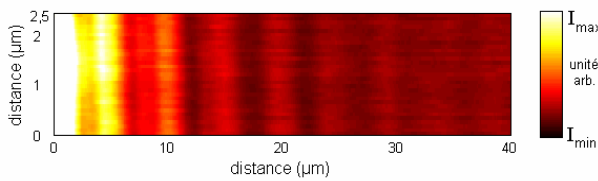
**Figure IX-25: Image optique (32×256) brute enregistrée sur le substrat de verre à  $\lambda=632,8\text{nm}$ ,  $\theta=55^\circ$**



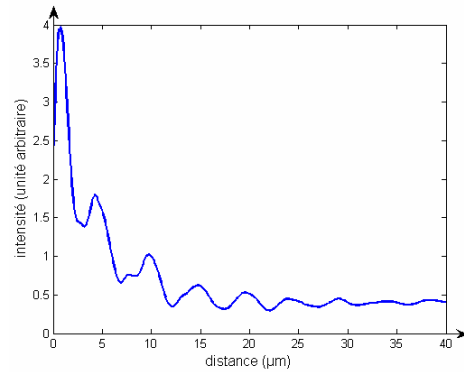
**Figure IX-26: Coupe moyennée de l'intensité optique mesurée**

Sur le substrat (Figure IX-25), on enregistre alors les interférences liées aux faisceaux incident et réfléchi (à la sortie du prisme). Connaissant la longueur d'onde et l'indice du prisme, cette mesure permet une confirmation de l'angle d'incidence. On montre ainsi que le microscope et les sondes utilisées sont capables de mesurer les plus fines oscillations de champ attendues dans cette expérience ( $\sim 220\text{nm}$ ). On mesure ensuite les interférences sur le film métallique en prenant soin de s'écarter légèrement de la marche

pour ne pas être gêné par les effets de diffraction et la contribution de l'onde de Sommerfeld excitée par la discontinuité [Aigouy07]. Les mesures sont donc effectuées à quelques  $\mu\text{m}$  de la marche. On observe alors les périodes d'interférences en fonction de l'angle du faisceau incident (Figure IX-27 et Figure IX-28). On vérifie enfin de manière systématique que les périodes d'interférences mesurées impliquant les PPS ne sont pas mesurées en polarisation 's'.



**Figure IX-27: Image optique (32×256) brute enregistrée sur le film métallique à  $\lambda=632,8\text{nm}$ ,  $\theta=55^\circ$**

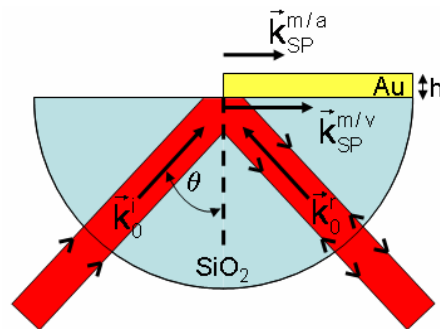


**Figure IX-28: Coupe moyennée de l'intensité optique mesurée**

En plus des oscillations, on remarque également l'atténuation de la valeur moyenne de l'intensité mesurée en s'éloignant de la marche. Cette fois les images sont plus grandes afin de permettre la mesure de plusieurs périodes dont la longueur caractéristique est le  $\mu\text{m}$ .

### IX.3.a.ii. Interprétation des observations expérimentales

Dans la configuration expérimentale, on considère 4 ondes différentes (Figure IX-29) qui peuvent interférer entre elles à la surface de l'échantillon: le faisceau incident  $\vec{k}_0^i$  (de vecteur d'onde tangentiel  $k_0 n \sin(\theta)$ ), les ondes PPS générées aux deux interfaces du film (de vecteurs d'onde  $k_{sp}^{m/a}$  et  $k_{sp}^{m/v}$ , calculés pour des interfaces uniques) et le faisceau dû à la réflexion du faisceau incident à la surface du prisme  $\vec{k}_0^r$  ( $-k_0 n \sin(\theta)$ ).



**Figure IX-29: Schéma des différentes ondes présentes dans la configuration expérimentale**

Ces différentes ondes donnent potentiellement 6 périodes d'interférences distinctes. Mais, bien que les interférences entre le faisceau incident et réfléchi soient clairement observables sur la partie diélectrique de l'échantillon (Figure IX-25 et Figure IX-26), les interférences entre le faisceau réfléchi et les ondes résonantes de surface n'ont pas été observées sur la partie métallique. Il est probable que la faible amplitude de l'onde réfléchie ne permette pas d'observer ces interférences. Les 4 périodes restantes à calculer sont estimées à partir des formules suivantes :

$$\begin{aligned}
 -\Lambda_1 &= 2\pi / |k_0 \sin(\theta) - \text{Re}(k_{SP}^{m/a})|, \\
 -\Lambda_2 &= 2\pi / |k_0 \sin(\theta) - \text{Re}(k_{SP}^{m/v})|, \\
 -\Lambda_3 &= 2\pi / |\text{Re}(k_{SP}^{m/v} - k_{SP}^{m/a})|, \\
 -\Lambda_4 &= 2\pi / |2k_0 \sin(\theta)|.
 \end{aligned}$$

$\Lambda_1$  et  $\Lambda_2$  permettent respectivement le calcul de la période d'interférence entre l'onde incidente et les deux ondes résonantes de surface (Au/Air et Au/Verre).  $\Lambda_3$  permet le calcul de la période d'interférence des deux ondes de surface entre elles. Finalement  $\Lambda_4$  permet le calcul de l'interférence entre le faisceau incident et le faisceau réfléchi à la surface du prisme. Les différentes mesures expérimentales sont comparées aux valeurs théoriques attendues sur la Figure IX-30. Les périodes d'interférences calculées entre les différentes ondes attendues dans notre système sont représentées par les courbes. Les périodes d'interférences mesurées sont reportées avec leurs intervalles d'incertitudes (croix noires).

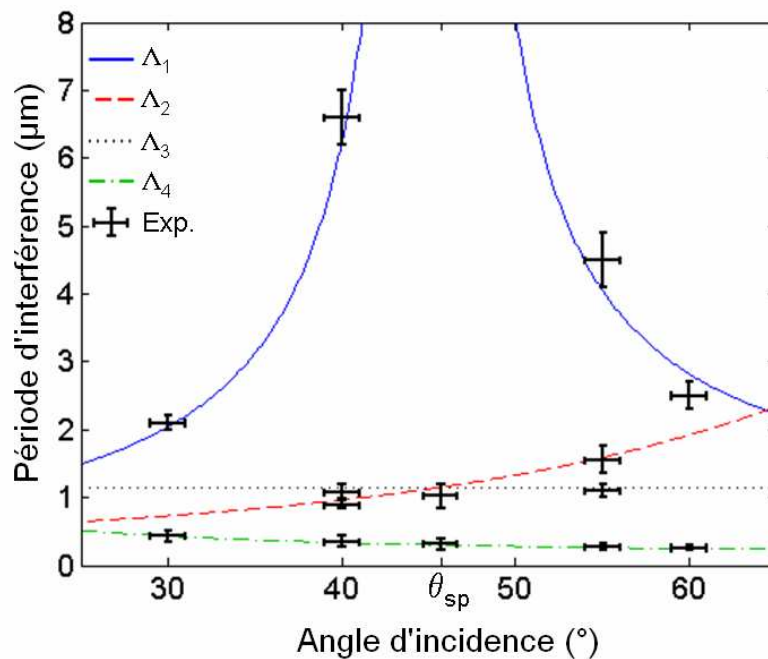
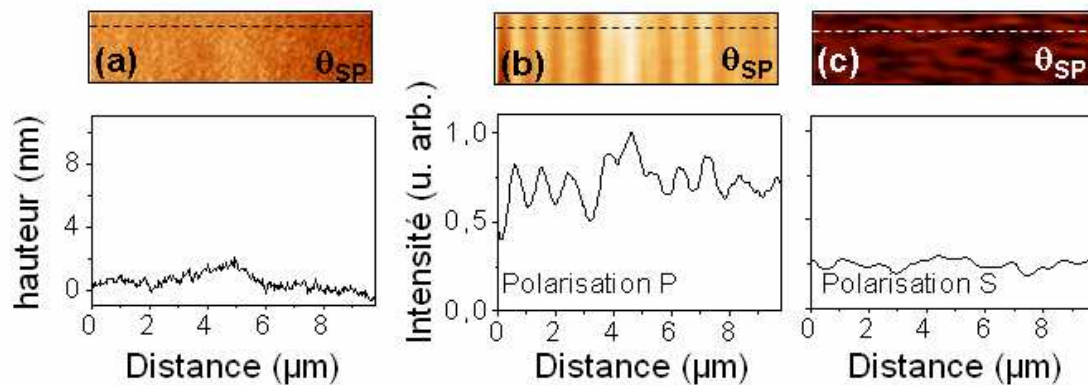


Figure IX-30: Comparaison en fonction de l'angle d'incidence des périodes d'interférences théoriques et expérimentales obtenues sur un demi-film d'or de 50nm d'épaisseur à  $\lambda=632,8\text{nm}$

L'incertitude sur les périodes est définie à partir de la discrétisation de l'image enregistrée. L'incertitude en angle est majorée à  $\pm 1,5^\circ$  pour prendre en compte la légère focalisation du faisceau incident dans le prisme hémisphérique et l'incertitude d'alignement du faisceau. Les valeurs des interférences mesurées sont moyennées en mesurant la longueur de plusieurs interférences. L'incertitude est évaluée en mesurant individuellement les différentes périodes observées. On remarque alors que l'estimation donnée par la valeur des parties réelles des différents vecteurs d'onde  $k_{sp}$  des interfaces découplées n'est pas rédhibitoire pour obtenir un bon accord entre les calculs et les mesures en champ proche à cette longueur d'onde.

Malgré le faible couplage entre les deux interfaces, on observe clairement dans l'espace direct l'interférence entre les 2 ondes résonantes du système demi-film mince (Figure IX-31).



**Figure IX-31: Images topographique (a) et optiques (b&c) obtenues à  $\theta_{SP}$  pour  $\lambda=632,8\text{nm}$  en polarisation 'p' et 's'**

A  $\theta_{sp}$ , comme pour les autres mesures, l'image en polarisation 's' ne montre aucune des interférences associées aux ondes plasmoniques utilisées dans le modèle (Figure IX-31-c). A cet angle précis, l'onde incidente et l'onde de surface résonante de l'interface Au/Air ont la même partie réelle, la période d'interférence devient alors infiniment grande. La période d'interférence entre l'onde incidente et le mode résonant de l'interface Au/Verre égale celle de l'interférence entre les deux modes d'interfaces. Cette coïncidence est à l'origine de l'observation dans l'espace direct d'une période unique d'environ  $1,1\mu\text{m}$  à la surface du métal. Pour les autres angles ( $\theta=40$  et  $60^\circ$ ), seules les transformées de Fourier réalisées permettent une mesure sans ambiguïté des périodes d'interférences associées [Brissinger10].



### IX.3.a.iii. Observations numériques

Comme pour l'étude des fentes de dimensions sub-longueur d'onde, nous avons souhaité confirmer nos mesures par des modélisations du système à l'étude. Nous allons nous concentrer cette fois sur les modules complexes des ondes transmises par un réseau de période  $p=128\mu\text{m}$ . Le ratio de la largeur des plots d'or sur la période est de  $1/2$ . Il existe donc 2 marches, l'une éclairée avec un angle  $\theta$  et la seconde éclairée avec un angle de  $-\theta$ .

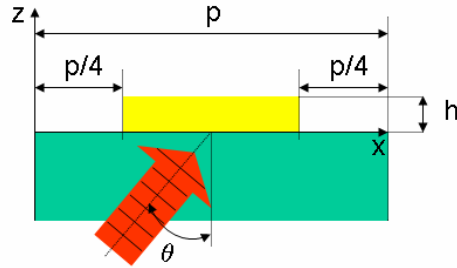


Figure IX-32: Schéma de la structure modélisée

Les plots d'or ont une épaisseur de  $h=50\text{nm}$  et la longueur d'onde dans le vide du faisceau incident est fixée à  $632,8\text{nm}$ . On représente sur la Figure IX-33 les valeurs des modules des ondes transmises pour différents angles d'incidence ;  $\theta=40^\circ$ ,  $\theta_{\text{SP}}\approx 44,5^\circ$  et  $60^\circ$ , respectivement en bleu, rouge et vert. On compare ainsi les parties réelles des vecteurs d'onde des ondes résonantes du système en fonction de l'angle d'incidence de l'onde excitatrice. On reporte en traits noirs discontinus les valeurs des parties réelles des vecteurs d'onde résonants calculés pour les interfaces uniques.

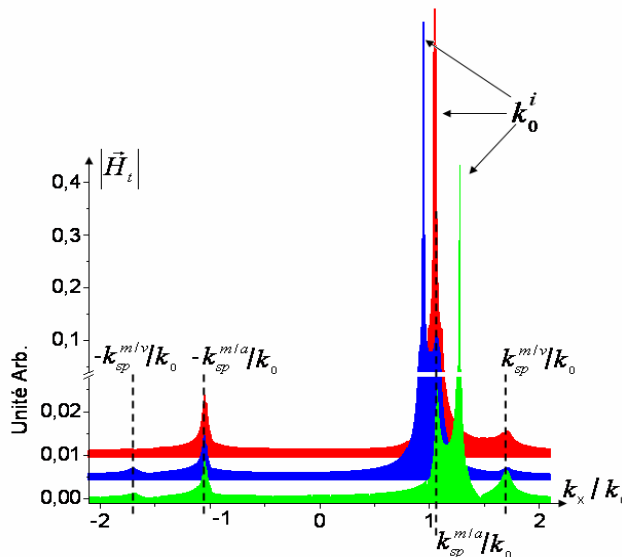


Figure IX-33: Module de l'amplitude complexe des ondes diffractées par une marche d'or éclairée par une onde plane pour différents angles d'incidence ( $\theta=40^\circ$ ,  $\theta_{\text{sp}}$  et  $60^\circ$ )

La Figure IX-33 montre clairement la variation de la projection du vecteur d'onde incident sur le plan de l'échantillon en fonction de l'angle d'incidence. La modification de l'angle d'incidence permettant de 'placer' la valeur du vecteur d'onde incident à des valeurs

inférieures, supérieures et égales à la partie réelle du vecteur d'onde résonant de l'interface Ag/Air. Pour cette épaisseur et cette longueur d'onde, on remarque que les résonances associées aux deux interfaces sont observables. Les valeurs des vecteurs d'onde résonants n'évoluent pas en fonction de l'angle d'incidence. Ces valeurs peuvent bien être approximées par les calculs effectués pour des interfaces découplées (notées en traits discontinus). On remarque la faible amplitude des ondes résonantes diffractées par la seconde marche d'or (valeurs de  $k_{sp}/k_0$  négatives). Les périodes d'interférences associées n'ont pas été observées numériquement dans la zone de champ étudiée près de la marche. En effet, seuls les interférences associées aux valeurs de  $k_{sp}$  positives sont observées dans l'espace direct. On confirme sur la Figure IX-33 que les ondes résonantes sont bien excitées pour tous les angles d'incidence simulés. Il n'est donc pas étonnant que les interférences associées soient observées dans l'espace direct. Cependant, pour les angles différents de l'angle d'excitation résonante du plasmon d'interface Au/Air, l'existence des interférences de différentes périodes rend difficile l'observation des périodes associées à chacune des ondes dont les amplitudes sont les plus faibles. La visibilité de ces interférences est en fait moindre, ce qui explique que les interférences associées au mode résonant de l'interface Au/Verre soient plus difficiles à observer dans l'espace direct ( $\theta=40^\circ$  et  $55^\circ$ ), sauf quand elles sont les seules à moduler le champ à  $\theta_{sp}$ .

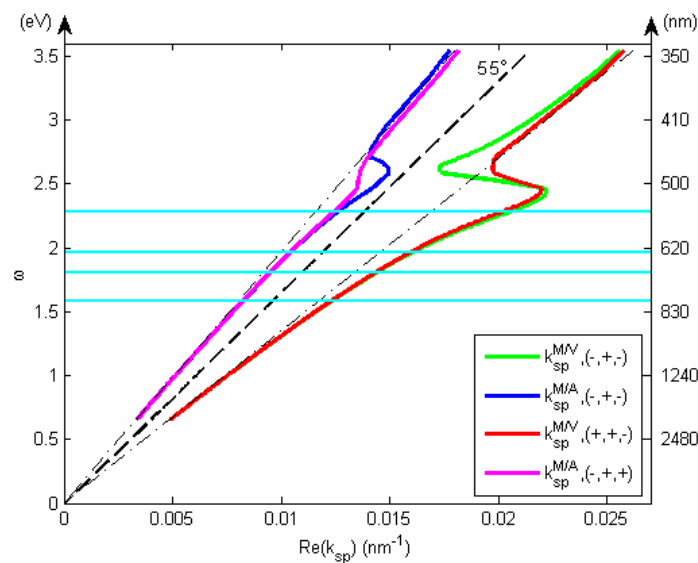
Dans le cas d'un demi-film mince, nous avons vu que le champ diffracté par la marche unique sur le film métallique peut être interprété en utilisant un modèle à 3 ondes : l'onde incidente et les deux modes d'ordre 0 du film mince continus de même épaisseur. L'étude angulaire réalisée sur la marche unique et l'étude précédente sur les fentes uniques nous ont permis de confirmer que ce modèle était valable quelque soit l'angle d'incidence du faisceau exciteur. Dans ce cas, on confirme que les parties réelles des vecteurs d'onde tangents résonants sont identiques quelque soit l'angle d'incidence. En effet, les mesures réalisées pour des angles compris entre  $30^\circ$  et  $60^\circ$  ainsi qu'à l'incidence normale (numériquement uniquement) permettent bien de remonter à la partie réelle des modes d'ordre 0 d'un film mince continu.

Si ces mesures ont été principalement réalisées pour la mesure de la composante réelle du vecteur d'onde résonant, nous avons également pu observer sur différentes images réalisées l'atténuation de l'intensité du champ mesurée. Cette atténuation implique que les ondes résultantes mesurées ont des composantes de vecteur d'onde complexes. Nous allons maintenant réaliser ces mesures pour différentes longueurs d'ondes pour des films de deux épaisseurs (50 et 25nm). Nous estimerons bien sûr la partie réelle des modes résonants en nous basant sur les modulations de l'intensité observée et nous verrons dans quelle mesure on peut également estimer leur partie imaginaire. Nous comparerons ensuite les valeurs obtenues aux courbes de dispersions exactes calculées pour des films minces d'or d'épaisseur 50 et 25nm.

### IX.3.b. Etudes en fonction de la longueur d'onde

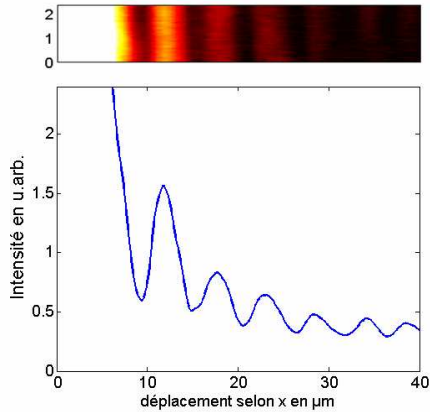
#### IX.3.b.i. Mesure des composantes réelles des vecteurs d'onde résonants

Pour ces mesures, le protocole expérimental est le même. On mesure pour différentes longueurs d'onde les interférences obtenues sur le film d'or. Connaissant l'angle d'incidence du faisceau, on remonte à la valeur de la partie réelle des vecteurs d'onde résonants excités par la marche d'or. L'angle d'incidence de  $55^\circ$  choisi ( $60^\circ$  à  $543\text{nm}$ ) permet d'obtenir des valeurs de  $\Delta k$  différentes entre l'onde incidente et les deux modes résonants du film mince associés à chacune des interfaces (Figure IX-34). Les périodes d'interférences associées sont de l'ordre du  $\mu\text{m}$ , période que le microscope permet d'observer de manière aisée.

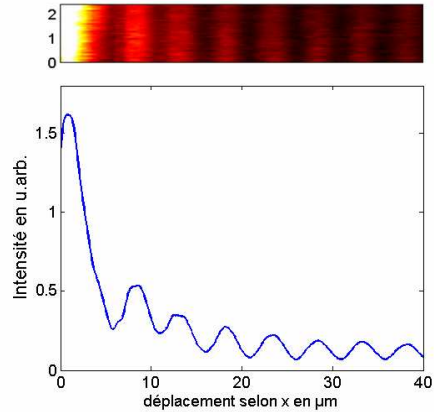


**Figure IX-34: Représentation de la composante tangentielle du vecteur de l'onde incidente à  $55^\circ$  et des différents modes résonants associés aux interfaces uniques d'un film mince d'or de  $50\text{nm}$  d'épaisseur**

Comme dans le cas de l'étude angulaire (IX.3.a), puisque l'angle choisi est différent de l'angle d'excitation résonante du mode de l'interface métal/air, les périodes d'interférences associées au mode résonant de l'interface Au/Verre n'ont pas été observées. Nous avons par contre obtenus de bons résultats pour la mesure de la partie réelle du vecteur d'onde résonant de l'interface Au/Air pour les différentes longueurs d'onde de travail. On présente des images obtenues pour  $\lambda=685$  et  $785\text{nm}$  (Figure IX-35 et Figure IX-36) et les coupes de l'intensité associées.

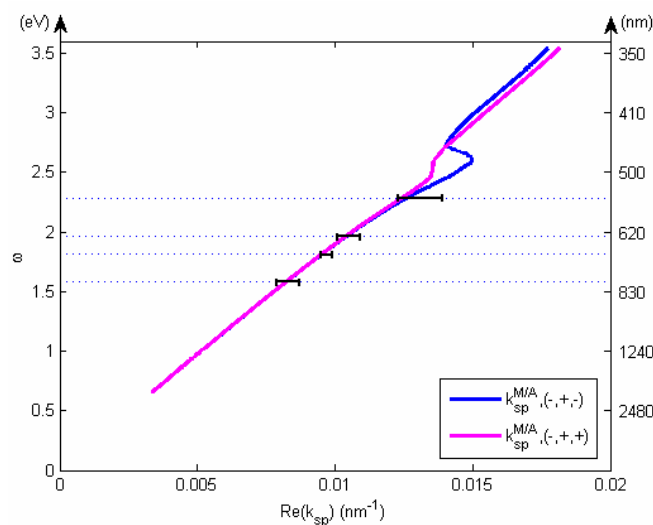


**Figure IX-35: Image optique brute (32×512) enregistrée sur le film d'or à  $\lambda=685\text{nm}$ ,  $\theta=55^\circ$  associée à la moyenne des lignes enregistrées**



**Figure IX-36: Image optique brute (32×512) enregistrée sur le film d'or à  $\lambda=785\text{nm}$ ,  $\theta=55^\circ$  associée à la moyenne des lignes enregistrées**

Les mesures des périodes d'interférences sont réalisées dans l'espace direct et confirmées en effectuant la Transformée de Fourier de l'intensité obtenue. L'incertitude de la mesure est estimée en mesurant de manière individuelle les différentes périodes observées. On reporte sur la Figure IX-37 les différentes valeurs des vecteurs d'onde déduites des mesures expérimentales avec leur intervalle d'incertitude.



**Figure IX-37: Comparaison des parties réelles des vecteurs d'onde résonants obtenus théoriquement pour le film d'or continu (courbe) et expérimentalement sur un demi-film d'or (traits noirs)**

Les valeurs des vecteurs d'onde résonants obtenus sont donc très comparables à celles calculées pour un film continu d'or de 50nm d'épaisseur pour les différentes longueurs d'onde de travail. A 543nm, la forte atténuation du champ associé au mode résonant implique une faible visibilité des interférences. Seules quelques périodes ont été observées ce qui rend la mesure plus incertaine qu'aux autres longueurs d'onde. Nous allons maintenant comparer les parties imaginaires des composantes des vecteurs d'onde résonants mesurées à celles calculées pour un film continu de même épaisseur.

IX.3.b.ii. Mesure des composantes imaginaires des vecteurs  
d'onde résonants

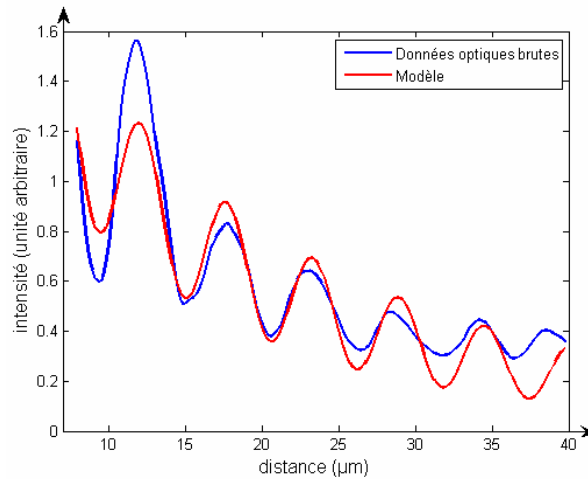
L'estimation de la partie imaginaire des vecteurs d'onde résonants repose sur le fait que l'amplitude de l'onde résonante associée à l'interface Au/Verre est négligeable dans notre modèle. Cette hypothèse est confirmée par les simulations numériques réalisées mais également par le fait que seules les interférences liées au mode résonant de l'interface Au/Air sont observées expérimentalement. Le modèle utilisé se base sur le calcul de l'intensité  $I = (E_0 e^{ik_0 x} + E_{sp}^{m/a} e^{ik_{sp}^{m/a} x} + E_{sp}^{m/v} e^{-ik_{sp}^{m/v} x}) \times cc$  que l'on décompose de la façon suivante :

$$I = |E_0|^2 + |E_{sp}^{m/a}|^2 e^{-2k_{sp}^{m/a} x} + |E_{sp}^{m/v}|^2 e^{-2k_{sp}^{m/v} x} + E_0 E_{sp}^{m/a} e^{-k_{sp}^{m/a} x} \cos((k_0 \sin(\theta) - k_{sp}^{m/a})x) + E_0 E_{sp}^{m/v} e^{-k_{sp}^{m/v} x} \cos((k_0 \sin(\theta) - k_{sp}^{m/v})x) + E_{sp}^{m/a} E_{sp}^{m/v} e^{-(k_{sp}^{m/a} + k_{sp}^{m/v})x} \cos((k_{sp}^{m/a} - k_{sp}^{m/v})x)$$

En considérant maintenant que l'amplitude de l'onde résonante associée à l'interface Au/Verre est négligeable ( $E_{sp}^{m/v} \ll E_0$  et  $E_{sp}^{m/v} \ll E_{sp}^{m/a}$ ), on peut simplifier le modèle de la façon suivante dans la zone de champ étudié

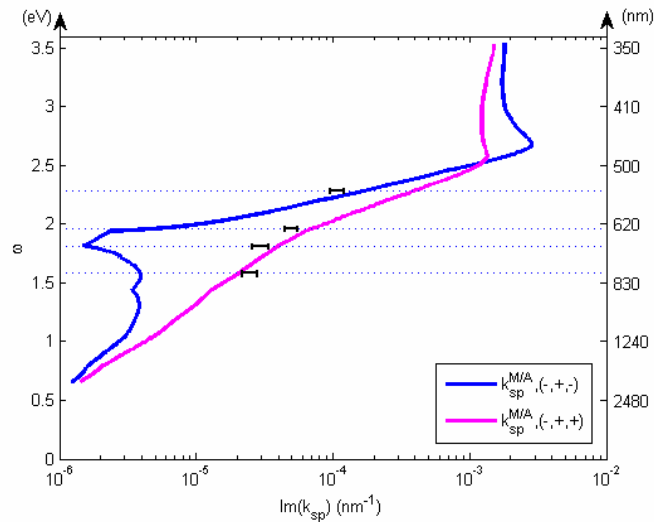
$$I = |E_0|^2 + |E_{sp}^{m/a}|^2 e^{-2k_{sp}^{m/a} x} + E_0 E_{sp}^{m/a} e^{-k_{sp}^{m/a} x} \cos((k_0 \sin(\theta) - k_{sp}^{m/a})x).$$

On confirme de façon évidente que le champ observé est sur-modulé par une unique période d'interférence associée au mode d'interface Au/Air, comme c'est le cas expérimentalement. De plus, la valeur moyenne de l'intensité observée est donc atténuée par un facteur  $e^{-2k_{sp}^{m/a} x}$ . Le programme utilisé pour obtenir la valeur de la décroissance permet également de tracer l'intensité du champ associé. On confirme ainsi que les différents paramètres obtenus, partie réelle et imaginaire du vecteur de l'onde résonante, ainsi que les amplitudes des ondes estimées par le programme permettent de reconstituer la coupe moyennée de l'intensité mesurée (Figure IX-38).



**Figure IX-38: Comparaison des données optiques brutes mesurées à  $\lambda=685\text{nm}$  et reconstitution de l'intensité calculée par le modèle**

Sur la Figure IX-39, on compare finalement les mesures expérimentales aux valeurs théoriques obtenues pour un film d'or continu de 50nm d'épaisseur. L'incertitude des mesures est évaluée par les différentes mesures réalisées pour chaque longueur d'onde.



**Figure IX-39: Comparaison des parties imaginaires des vecteurs d'onde résonants obtenus théoriquement pour le film d'or continu (courbe) et expérimentalement sur une marche d'or unique (traits noir)**

Mis à part la mesure effectuée à  $\lambda=543\text{nm}$  et pour laquelle la forte atténuation rend la mesure peu fiable, les autres mesures effectuées sont clairement associées au mode d'ordre 0 résonant de l'interface Au/Air dans la détermination  $(-,+,-)$ . C'est également la configuration qui est excitée en configuration K-R sans discontinuité. L'autre mode  $k_{sp}^{m/a}$  dans la détermination  $(-,+,-)$  a une atténuation moins importante que ce mode. Mais ce mode n'a pas été observé.

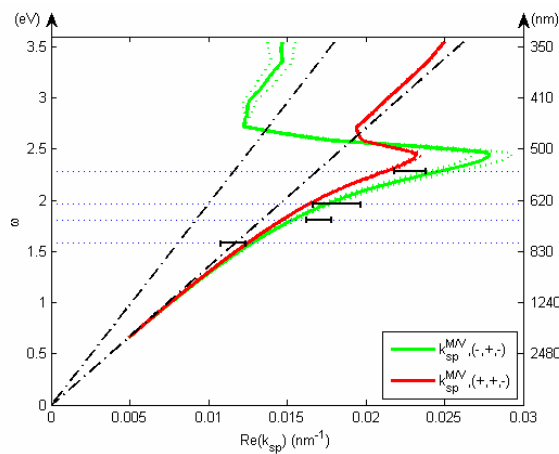
Nous allons maintenant nous intéresser à un film de très faible épaisseur (25nm). Contrairement aux mesures précédentes, nous allons placer le faisceau incident à l'angle d'excitation résonante du mode d'ordre 0 associé à l'interface métal/air. Les mesures effectuées seront alors comparées aux courbes de dispersion des modes d'ordre 0 d'un film mince continu de même épaisseur.

## IX.4. Marche unique : interfaces couplées

### IX.4.a. Observations expérimentales

Nous avons enfin réalisé une série de mesures de la répartition de l'intensité au-dessus d'un film d'or de 25nm d'épaisseur. Les images topographiques enregistrées montrent que la très faible épaisseur déposée présente une rugosité plus importante que les films de 50nm d'épaisseur. L'interprétation des mesures nécessite par conséquent plus de prudence.

La période des interférences observée est cette fois légèrement inférieure au  $\mu\text{m}$ . Les valeurs des composantes de vecteur d'onde obtenues expérimentalement sont représentées avec leur intervalle d'incertitude sur la Figure IX-40.



**Figure IX-40: Comparaison des parties imaginaires des vecteurs d'onde résonants obtenus théoriquement pour le film d'or continu (courbe) et expérimentalement sur une marche d'or unique (traits noir)**

Les mesures des périodes observées expérimentalement permettent de calculer des valeurs de vecteurs d'onde dont les parties réelles sont comparables aux modes résonants d'ordre 0 calculés théoriquement pour un film continu de même épaisseur. Les périodes observées sur le film dues à l'interférence des différentes ondes diffractées par la marche sont donc bien modélisables par les interférences entre les modes d'ordre 0 du film mince continu considéré dans notre modèle.

La présence de plus de deux ondes dans le modèle utilisé nécessite une analyse de l'intensité mesurée plus approfondie. L'analyse des décroissances de champ observées n'a pas abouti. En effet, le modèle utilisé précédemment suppose que l'amplitude du mode associé à l'interface Au/Verre est négligeable ce qui n'est vraisemblablement pas le cas ici.

# Conclusions et perspectives de la 3<sup>ème</sup> partie

## Conclusions

Au cours du travail rapporté dans la 3<sup>ème</sup> partie de ce manuscrit nous avons donc réalisé l'étude théorique et expérimentale des modes résonants de films minces métalliques. Dans un premier temps nous sommes revenu sur la définition des modes propres d'un système physique et sur le phénomène de résonance. Nous avons ensuite mené à son terme l'étude théorique des résonances électromagnétiques dans le cas d'un film mince continu. La méthodologie appliquée peut également se généraliser à des empilement plus complexes. Avec cette étude, nous avons pu définir l'ensemble des modes propres résonants du film mince continu. Malgré la complexité (à plusieurs points de vue) d'obtenir les vecteurs d'ondes résonants du système étudié, nous avons tracé les courbes de dispersion complètes associées aux modes résonants d'ordre 0 définis pour deux métaux nobles couramment usités, l'argent et l'or. Nous avons également tracé les courbes de dispersion associées aux 3 premiers modes d'ordre supérieur dans le cas de l'argent. Nous avons ensuite étudié les possibilités d'excitation de ces ondes résonantes en fonction de la configuration expérimentale. Après une présentation des différentes possibilités d'excitation optique, nous avons développé le cas de l'excitation par une discontinuité introduite dans le film mince. Nous avons également réalisé une étude numérique de la réponse d'un film mince à une puis plusieurs ondes planes. Cette étude montre les possibilités d'excitations sélectives des modes propres du film mince grâce à la mise en forme du faisceau incident.

Après cette étude théorique, nous avons finalement utilisé les propriétés diffractives d'une marche d'or unique pour mesurer expérimentalement en fonction de l'angle d'incidence et de la longueur d'onde les vecteurs d'onde des ondes résonantes excitées sur un demi-film mince métallique. Les études expérimentales ont été effectuées dans le cas du couplage faible (film de 50nm d'épaisseur) et fort (film de 25nm d'épaisseur) des interfaces métal/diélectrique. La mesure et l'analyse précise de l'intensité observée en champ proche ont permis d'associer les valeurs expérimentales obtenues aux valeurs théoriques calculées dans le cas de films minces continus de mêmes épaisseurs.

Dans le cas du couplage faible, les mesures effectuées ont été associées au même mode résonant que le mode d'ordre 0 excité dans la configuration Kretschmann-Raether. Nous avons ainsi confirmé que d'une manière analogue au cas de l'oscillateur mécanique, les discontinuités locales étudiées lors de cette thèse permettent l'excitation d'onde dont les caractéristiques sont celles des modes propres de la structure continue. Dans le cas de l'oscillateur unidimensionnel, l'excitation à un instant  $t$  donné du mouvement de la masse conduit à l'apparition limitée dans le temps d'oscillations associées aux modes propres du système. Dans le cas du film mince discontinu, la discontinuité joue également ce rôle mais pour les variables d'espaces, excitant localement des ondes dont les caractéristiques sont semblables à celles des modes propres du système étudié. Enfin, dans le cas du couplage fort (film de très faible épaisseur) nous avons pu associer les mesures réalisées à la partie réelle des modes d'ordre 0 de l'interface métal/verre.



## Perspectives

A courte échéance, il nous paraît intéressant d'affiner les mesures expérimentales effectuées dans le cas du couplage fort pour confirmer l'excitation du mode propre résonant de l'ensemble de solution n°3-b. Deux points sont essentiels pour permettre une réalisation optimale de cette étude. Le dépôt du film doit être contrôlé avec précision. En effet, pour ces épaisseurs, une variation de quelques nanomètres suffit à modifier quantitativement les valeurs théoriques des vecteurs d'onde calculés pour le film mince continu. De plus, il est peut-être également nécessaire de prendre en compte le dépôt de la couche d'accroche de chrome dont l'épaisseur devient non-négligeable (~15% de l'épaisseur totale). Ce point essentiel devrait être vérifié prochainement par la réalisation de simulations numériques.

Il serait également intéressant de mesurer la composante perpendiculaire au film des vecteurs d'onde des ondes résonantes. Cette composante est imaginaire pure en configuration K-R. Dans le cas de l'excitation avec une discontinuité il est possible que la composante réelle du vecteur d'onde associé soit non-nulle. La mesure de cette composante permettrait de confirmer l'excitation exacte des modes résonants associés au film mince.

A plus longue échéance, la méthode développée pour calculer les valeurs exactes des différents modes peut être appliquée à différents empilements. La recherche des solutions exactes de l'équation de dispersion permet de connaître de manière précise la répartition de l'énergie associée à un mode donné du système. Il est ainsi possible d'optimiser en fonction de la longueur d'onde et de l'épaisseur, l'amplification du champ ou la longueur d'atténuation. Suivant le système étudié, nous avons vu qu'il existe des épaisseurs et des longueurs d'onde pour lesquelles certaines composantes (réelle ou imaginaire) peuvent s'annuler. Ces différentes caractéristiques peuvent être particulièrement intéressantes pour limiter l'extension spatiale ou l'atténuation du champ électromagnétique associé.

Concernant les différents modes propres obtenus théoriquement, les mesures effectuées en champ proche sur des structures discontinues ont été associées à 2 des 4 modes propres d'ordre 0 du système continu. Aucune mesure n'a été associée aux modes propres d'ordre supérieur. Il est probable que ces modes participent à la structure du champ diffracté. Il serait donc particulièrement intéressant de confirmer expérimentalement l'excitation des ondes associées. De la même façon, il est possible que les modes d'ordre 0 dans les autres déterminations qui n'ont pas été observés dans notre configuration expérimentale soient observables dans des structures plus complexes comme les empilements métal/diélectrique/métal, aussi appelés MIM. L'étude en champ proche de telles structures permettrait alors de conclure.

Enfin, d'une manière plus générale, la recherche de la compréhension globale en champ proche des mécanismes mis en jeu dans la diffraction de la structure étudiée nous conduit à l'étude de la fonction de diffraction de la marche unique en fonction de son épaisseur, de la longueur d'onde de travail et de l'angle d'incidence du faisceau. Cette fonction définit la structure 'fente unique', constituée de deux marches placées en vis-à-vis, pourrait alors être appréhendée comme la mise en résonance de la diffraction des deux marches uniques.





## Conclusions générales

Au cours de cette thèse nous avons donc réalisé l'étude et la manipulation en champ proche de différentes résonances électromagnétiques. La première partie de ce manuscrit présente le principal outil de caractérisation utilisé, le SNOM. La comparaison entre les microscopies 'classique' et 'champ proche' nous a permis de mettre en avant les avantages de ce type de microscope. Nous avons finalement présenté le microscope utilisé lors de cette thèse et les configurations expérimentales envisageables. Les travaux effectués à l'aide de ce microscope sont venus appuyer la réalisation de deux études.

La première concerne l'étude de nano-cavités Fabry-Perot intégrées sur SOI et dont les miroirs sont réalisés à partir de cristaux photoniques. Malgré les faibles puissances injectées, le facteur de qualité des cavités et leur faible volume permettent l'observation d'effets non-linéaires. Ces effets peuvent provoquer un régime de fonctionnement bistable de la cavité. L'étude numérique du modèle utilisé pour modéliser les différents régimes de fonctionnement de la cavité (mono- ou bi-stable) a conduit à l'identification de l'origine des non-linéarités. Nous avons ensuite montré expérimentalement, ainsi qu'à l'aide de notre modèle que la modification de l'environnement champ proche de la cavité permet le contrôle du régime de fonctionnement des cavités étudiées. L'analyse du modèle complet utilisé a fourni une compréhension globale des différents phénomènes mis en jeu. Finalement, la représentation synthétique des résultats obtenus sous la forme de diagrammes a permis de valider le bon accord entre les expériences et les prédictions du modèle développé.

La seconde étude concerne les plasmons-polaritons de films minces métalliques. La partie théorique de cette étude qui nous a permis d'approfondir nos connaissances du phénomène de résonance en électromagnétisme est présentée en deux étapes dans ce manuscrit. Nous avons dans un premier temps réalisé l'étude du système homogène avant de discuter dans un deuxième temps différentes possibilités d'excitation optique. Nous avons donc réalisé l'étude complète des modes propres de films minces métalliques. La méthode développée, très généraliste permet d'envisager l'étude d'autres structures linéaires semblables ou plus complexes. Nous avons finalement obtenu l'ensemble des courbes de dispersion théoriques complètes des films métalliques continus d'or et d'argent. Ces différentes courbes ont permis de discuter les possibilités d'excitation de ces modes résonants sur des films minces continus et discontinus. Enfin, l'étude expérimentale réalisée sur des films de différentes épaisseurs pour différentes longueurs d'onde, appuyée par des simulations numériques a permis d'associer les ondes mesurées aux modes de films minces continus calculés numériquement.

Au cours de ces deux études, nous avons appliqué une même méthodologie que nous avons souhaité rigoureuse. Les résultats obtenus en champ proche, souvent soumis à interprétation ont été systématiquement confirmés par des simulations numériques basées sur les différents modèles développés. L'étude poussée des différents modèles nous a

également permis de comprendre de manière approfondie les différents systèmes étudiés. Nous espérons que les résultats expérimentaux ainsi confirmés et les modèles développés constituent des bases solides pour la réalisation de nouvelles études.

## **Perspectives générales**

Les études de résonances électromagnétiques réalisées au cours de cette thèse et leur prolongement s'inscrivent bien dans les objectifs actuels de la recherche. En effet, les dimensions caractéristiques des objets étudiés, inférieures au  $\mu\text{m}$  permettent d'envisager différentes fonctionnalités opto-électroniques (fonctions logiques tout optique, capteurs...) requérant un faible encombrement spatial. Ce faible encombrement implique un fort potentiel d'intégrabilité au sein de structures opto-électroniques plus complexes.

De plus, la recherche de l'optimisation de l'excitation résonante de système implique une diminution de l'énergie consommée, un axe de recherche particulièrement porteur aujourd'hui. En effet, à niveau de détection égale, l'amplification de la réponse du système à la résonance, permet de faciliter la détection du signal. Il est alors possible de diminuer l'énergie nécessaire à la mesure effectuée. Le système optimisé est ainsi plus économique.

D'un point de vue beaucoup plus fondamental, la recherche d'une meilleure compréhension du phénomène de diffraction par des études en champ proche est un défi qu'il semble aujourd'hui possible de relever. En effet, les moyens technologiques de fabrication des échantillons permettent la réalisation contrôlée de structures diffractantes dont les défauts de fabrication peuvent être significativement inférieurs à la longueur d'onde. Ces études en champ proche sont importantes pour réaliser la quantification de l'excitation des ondes non-radiatives. Comme nous l'avons vu, ces ondes sont uniquement observables en champ proche et leur amplitude, parfois très importante leur confère un rôle de premier ordre dans les phénomènes de couplage à très faible distance.

*Felix qui potuit rerum cognoscere causas.*

Virgile (vers 70-19 av. J-C)



## Annexe A. Comparaison des résultats obtenus sur les différentes cavités Fabry-Perot

Dans cette annexe sont présentés les résultats obtenus lors de l'étude de la perturbation induite par une sonde champ proche sur la stabilité des nano-cavités 4 et 6. L'étude de ces cavités a été effectuée dans les mêmes conditions et suivant les mêmes étapes que pour la cavité 5. Dans le cas de la cavité 3, les résultats en régime non-linéaire n'ont pas été développés. Les caractéristiques de cette cavité étant très proches de celles de la cavité 4, on obtient en fait des résultats très similaires. Nous rappelons dans le tableau suivant les différentes caractéristiques des cavités étudiées obtenues en régime linéaire.

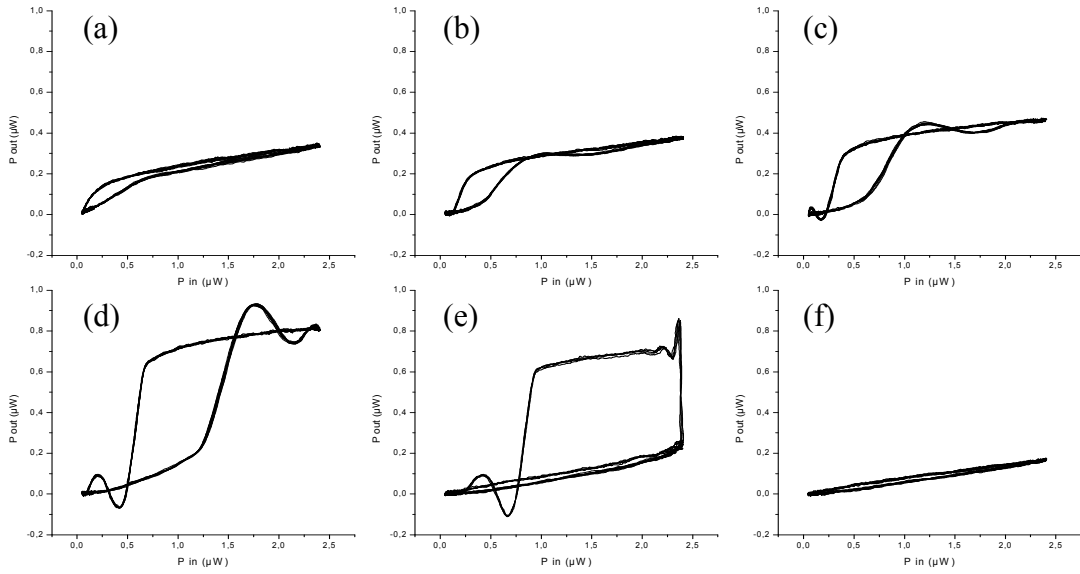
Cavité	$\lambda_r$ (nm)	Indice effectif	Réfectivité des miroirs	Transmission des miroirs	Q calculé
Cavité3	1556,666	2,83030	0,999	0,00095	6282
Cavité4	1556,71	2,83038	0,9993	0,0005	8975
Cavité5	1558,271	2,83322	0,99975	0,0001	25137
Cavité6	1556,835	2,83061	0,99982	0,000033	34914

**Tableau A-1: Récapitulatif de certaines caractéristiques des cavités Fabry-Perot étudiées en transmission pour une puissance injectée d'environ 125nW**

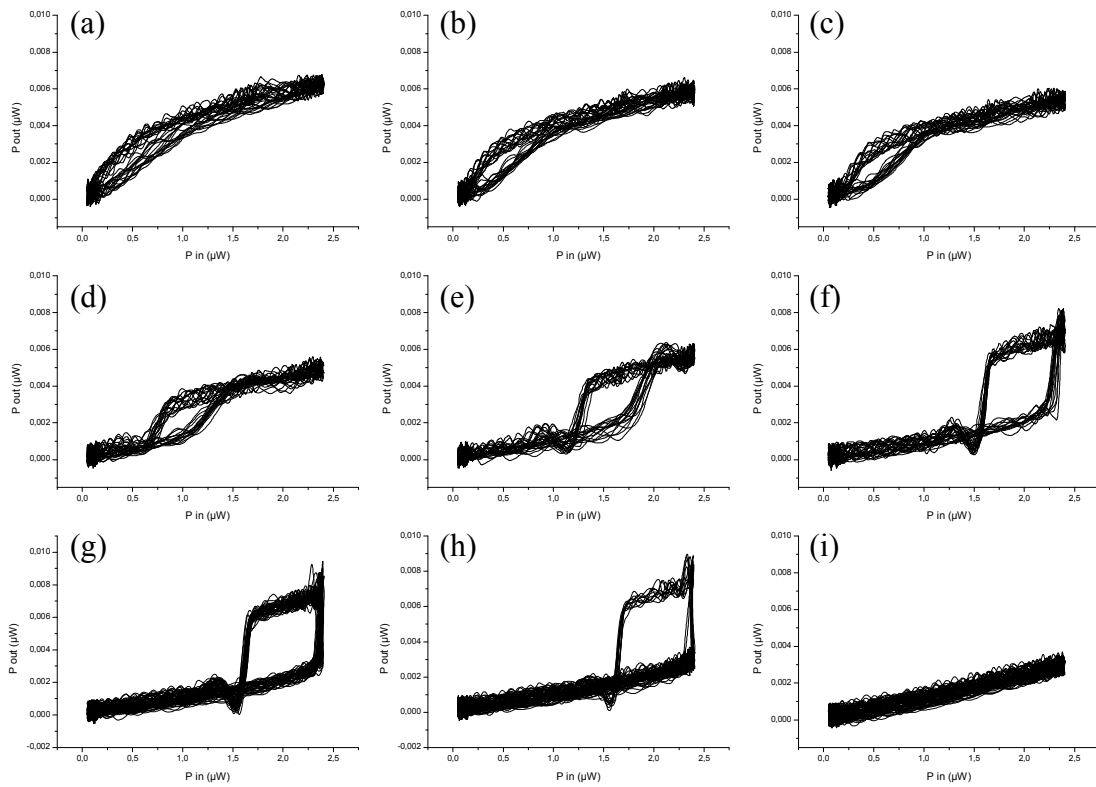
Lors de l'étude des fonctions de transfert en intensité des différentes cavités, on observe comme dans le cas de la cavité 5 l'ouverture du cycle d'hystérésis pour des detuning positifs. Cette ouverture augmente avec le detuning, jusqu'à une longueur d'onde maximum au-delà de laquelle, le cycle ne s'ouvre plus. Les Figure A-1 et Figure A-2 présentent l'évolution de l'ouverture du cycle d'hystérésis pour les cavités 4 et 6 en fonction du detuning par rapport à la longueur d'onde de résonance de chacune des cavités.

On remarque tout particulièrement sur la Figure A-1(e) que certains cycles sont ouverts alors que d'autres sont fermés pour une même longueur d'onde de travail. On se trouve alors exactement à la longueur d'onde de bistabilité spectrale entre l'état haut et l'état bas. Dans ce cas, de très faibles variations des paramètres du système (injection, cavité) entre deux cycles d'injection consécutifs permettent ou non à la cavité de fonctionner en régime bistable. Cette observation confirme la sensibilité du passage du régime mono-stable au régime bi-stable pour des longueurs d'onde proches du front de bistabilité spectrale.





**Figure A-1 : Fonction de transfert en intensité mesurée sur la cavité 4 en fonction du detuning, respectivement de a à f : 0, 50, 100, 150, 200, 250 pm.**



**Figure A-2 : Fonction de transfert en intensité mesurée sur la cavité 6 en fonction du detuning, respectivement de a à i : 0, 15, 30, 45, 55, 58, 60, 62 et 65 pm.**

La comparaison de la Figure A-1 avec la Figure A-2 permet d'observer clairement la dégradation du rapport signal/bruit du au très faible taux de transmission de la cavité 6.

Nous avons bien sûr réalisé en parallèle des mesures, la modélisation des fonctions de transfert en intensité avec notre modèle et de la perturbation induite par la sonde. Pour vérifier de façon globale les différents paramètres de notre modèle, on trace alors les diagrammes de bistabilité pour les différents detuning (Figure A-3 et Figure A-4).

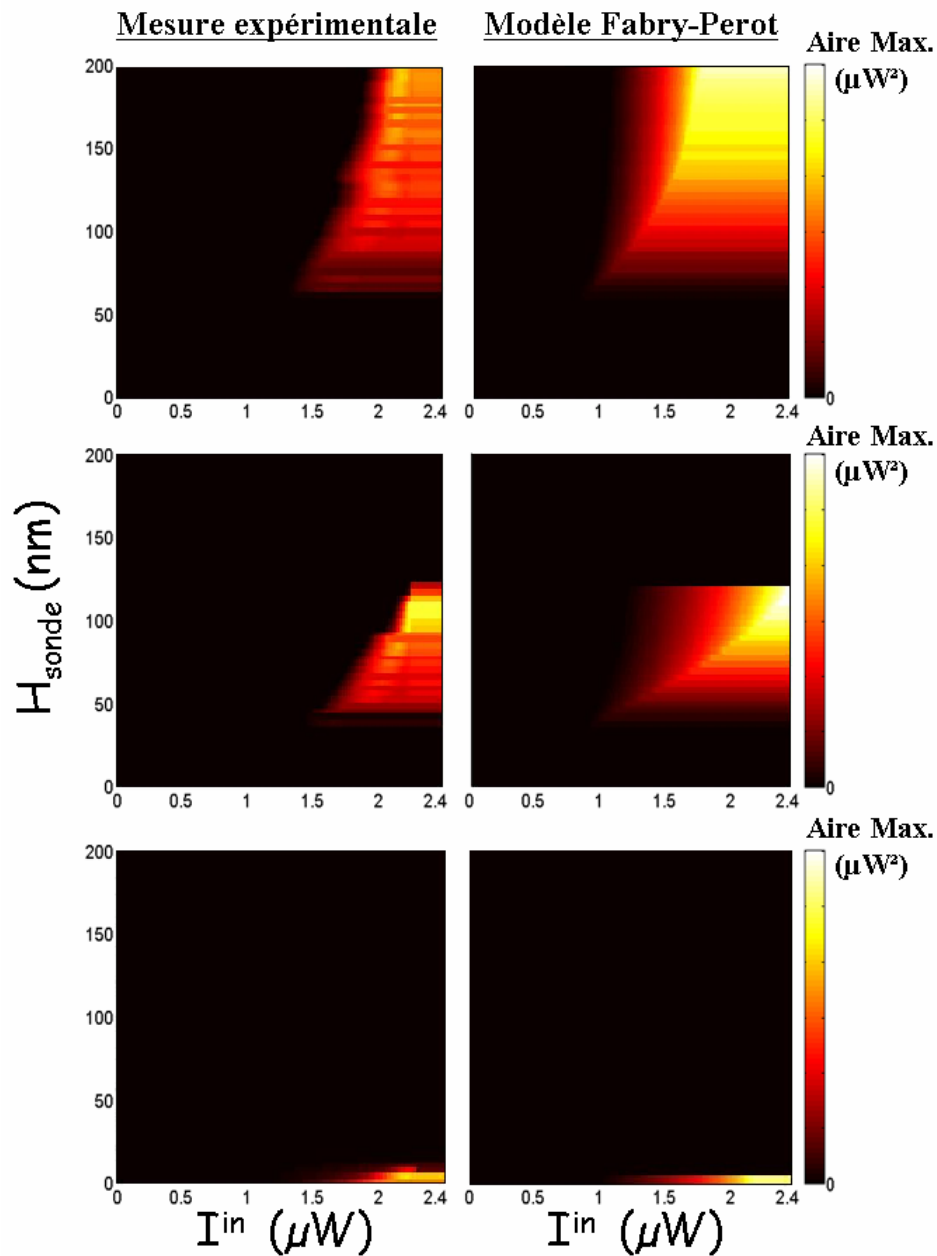


Figure A-3: Diagrammes de bistabilité mesurés et simulés pour la cavité 4 pour différents detuning (190, 240 et 440 pm)

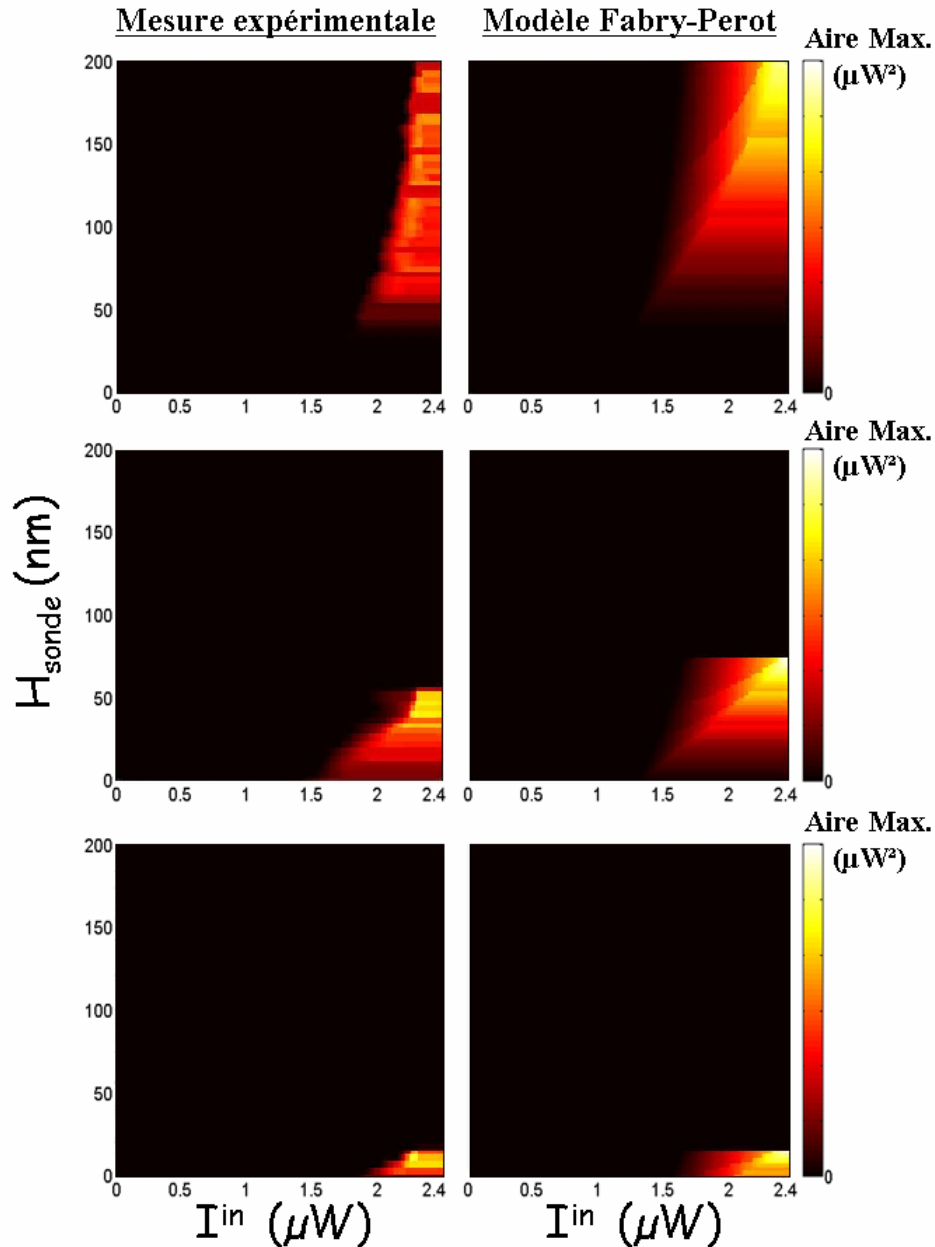


Figure A-4 : Diagrammes de bistabilité mesurés et simulés pour la cavité 6 à différents detuning (45, 55 et 62pm)

On confirme une nouvelle fois sur les Figure A-3 et Figure A-4 la validité de notre modèle pour chacune des cavités étudiées grâce au bon accord obtenu entre mesure et simulation.

## Annexe B. Courbes de dispersion des modes d'ordre 0 d'un film mince d'or asymétrique

Les courbes présentées dans cette annexe sont obtenues dans les mêmes conditions que les courbes présentées pour le film asymétrique d'argent. Ces courbes représentent les modes propres d'ordre 0 solutions de l'équation de dispersion  $D(k_{z1}, k_{zm}, k_{z2}, d) = 0$  (Eq. VII-10) pour un film asymétrique d'argent. Le modèle utilisé pour le film métallique est le modèle réel dont les valeurs d'indice et d'absorption sont données dans la référence suivante [Johnson&Christy72]. Le film est encadré par deux milieux diélectriques homogènes semi-infinis, l'air dans le milieu 1 ( $n = 1$ ) et le verre dans le milieu 2 ( $n = 1.458$ ).

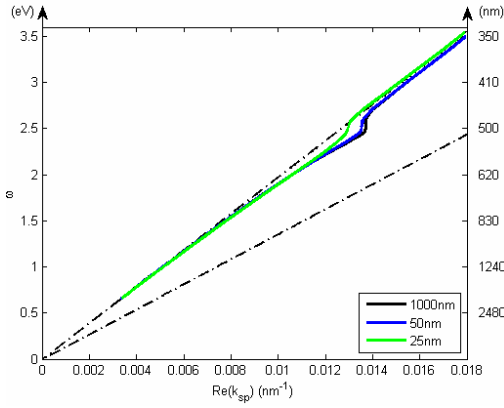
A des fins de comparaison, l'ordre d'étude des différentes déterminations est le même que dans le cas de l'argent. La numérotation des différents ensembles de solutions permet de transposer directement les différents raisonnements effectués à partir des courbes de dispersion de l'argent pour l'excitation des différents modes résonants.

- Etude de la 4<sup>ème</sup> détermination (+,-/+,+)

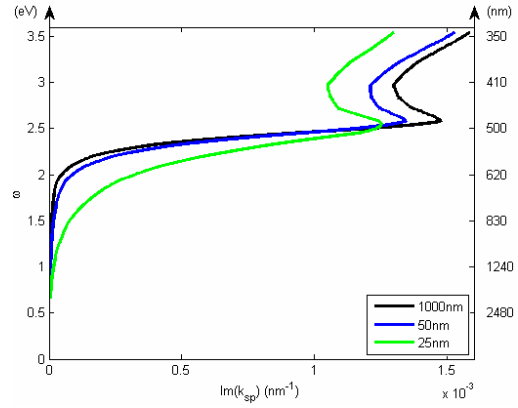
La détermination pour laquelle les parties réelles de  $k_{z1}$  et  $k_{z2}$  sont positives a également été étudiée. Elle ne présente pas de pôles d'ordre 0. L'étude de ce dernier cas nous a confirmé que les 4 ensembles de solutions présentés représentent bien l'intégralité des modes propres d'ordre 0.

▪ 1<sup>er</sup> détermination : ensemble de solution n°1

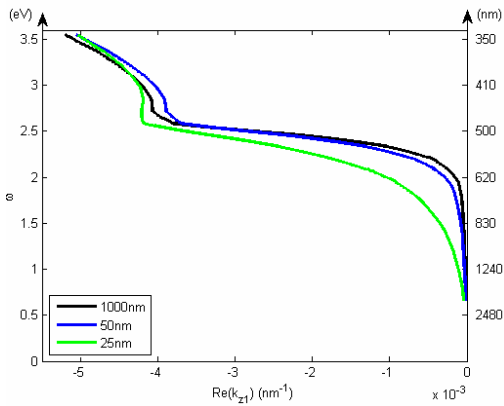
Cet ensemble est associé au mode propre de l'interface métal/air  $k_{sp}^{m/a}$ , détermination (-,-/+ ,+). Le mode n'est pas confiné (mode 'leaky') et les valeurs de  $k_z$  calculées dans chacun des milieux diélectriques montrent que le mode transfère l'énergie de l'air vers le verre.



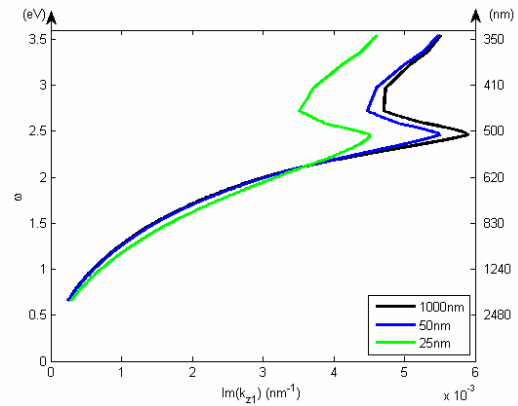
**Figure B-1: Courbe des dispersion de la partie réelle de  $k_x$  du mode résonant**



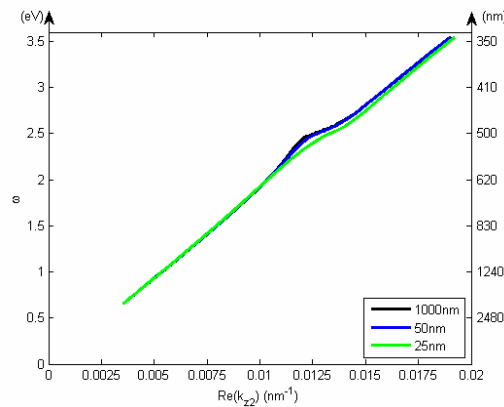
**Figure B-2: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  du mode résonant**



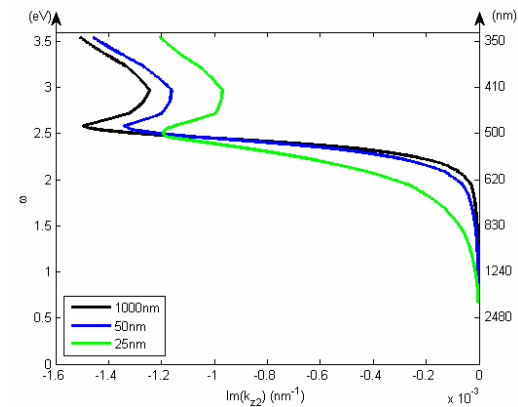
**Figure B-3: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z1}$  du mode résonant**



**Figure B-4: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z1}$  du mode résonant**



**Figure B-5: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z2}$  du mode résonant**



**Figure B-6: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z2}$  du mode résonant**

▪ 2<sup>ème</sup> détermination : ensemble de solution n°2

Cet ensemble de solutions est associé au mode résonant de l'interface métal/verre, détermination (+,-/+,-). Le mode n'est pas confiné (mode 'leaky') et les valeurs de  $k_z$  des milieux diélectriques montrent que le mode transfère l'énergie du verre vers l'air.

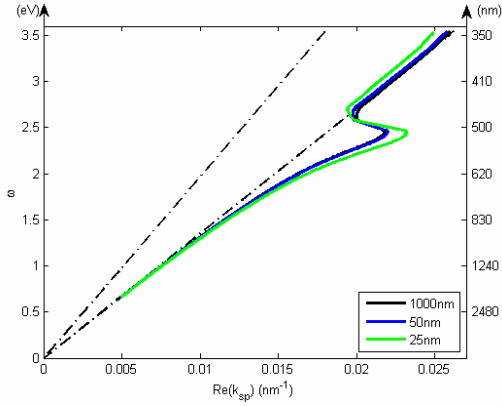


Figure B-7: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  du mode résonant

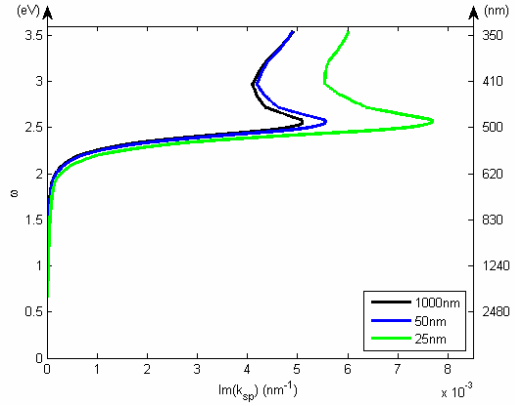


Figure B-8: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  du mode résonant

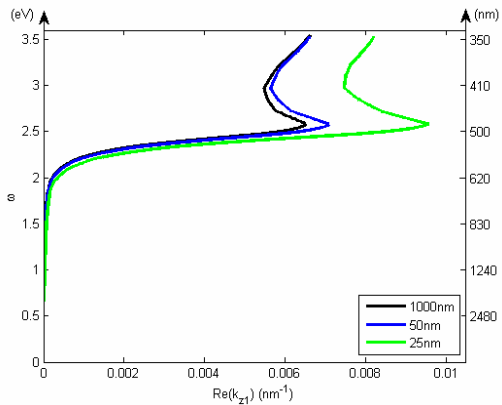


Figure B-9: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z1}$  du mode résonant

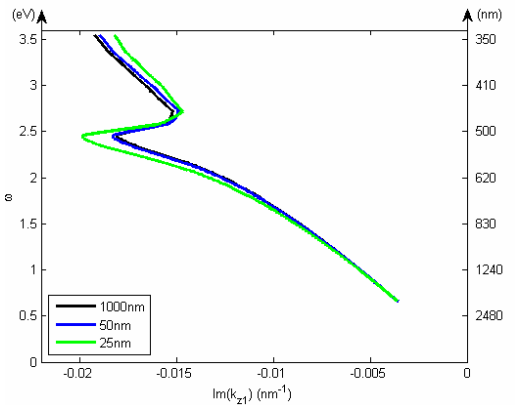


Figure B-10: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z1}$  du mode résonant

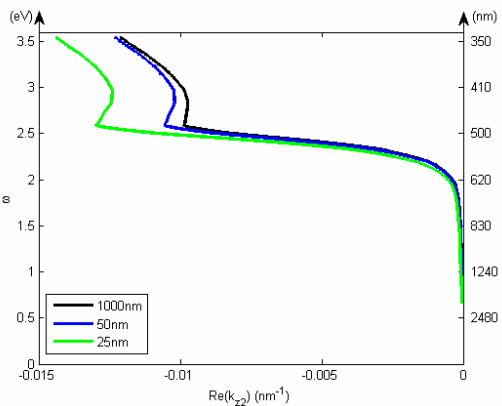


Figure B-11: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z2}$  du mode résonant

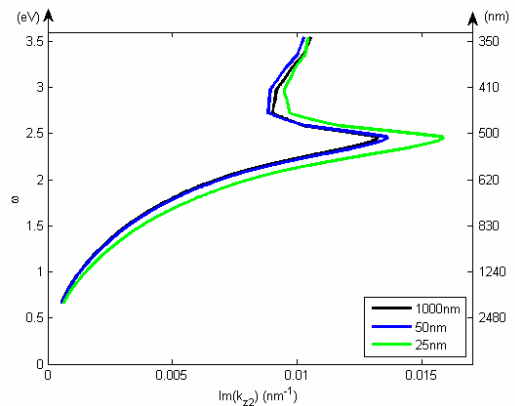


Figure B-12: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z2}$  du mode résonant

▪ 3<sup>ème</sup> détermination : ensemble de solutions n°3-a

Dans cette détermination (-,-/+,-), comme pour l'argent, il existe deux ensembles de solutions associées aux modes d'ordre 0. Cet ensemble numéroté 3-a est associé au mode d'interface métal/air  $k_{sp}^{m/a}$  pour les grandes longueurs d'onde.

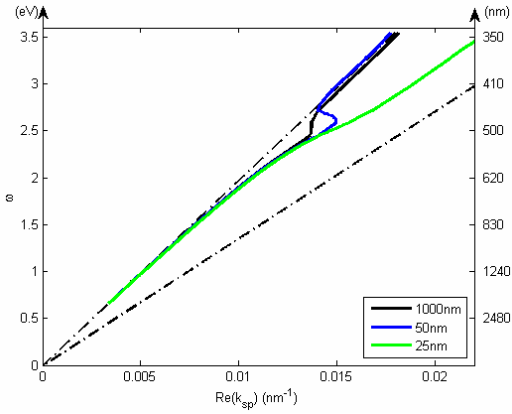


Figure B-13: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  du mode résonant

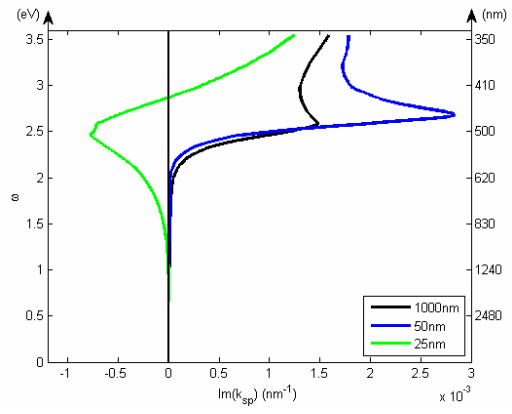


Figure B-14: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  du mode résonant

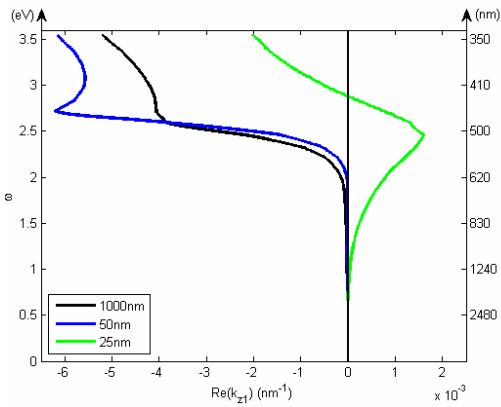


Figure B-15: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z1}$  du mode résonant

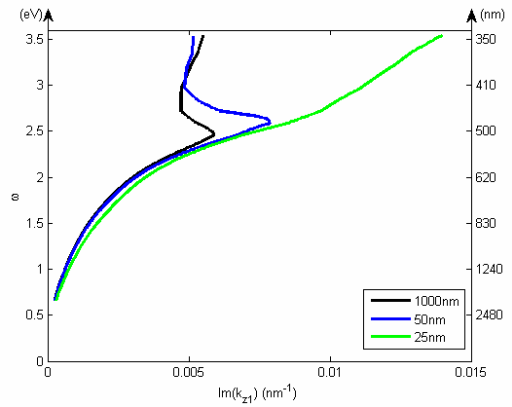


Figure B-16: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z1}$  du mode résonant

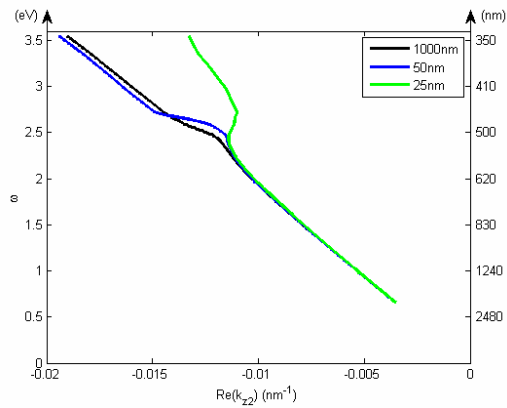


Figure B-17: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z2}$  du mode résonant

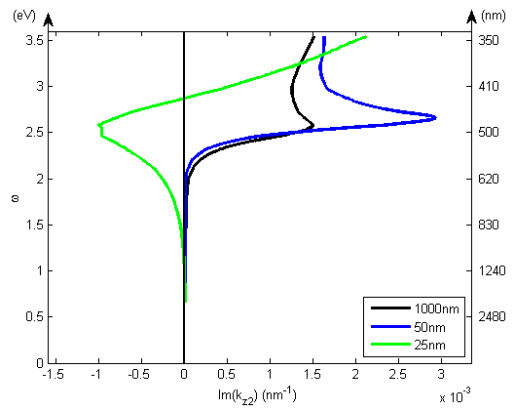


Figure B-18: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z2}$  du mode résonant

▪ 3ème détermination : ensemble de solutions n°3-b

Cet ensemble de solutions est associé au mode résonant de l'interface métal/verre  $k_{sp}^{m/v}$ , dans la même détermination (-,-/+,-) que l'ensemble de solution n°3-a.

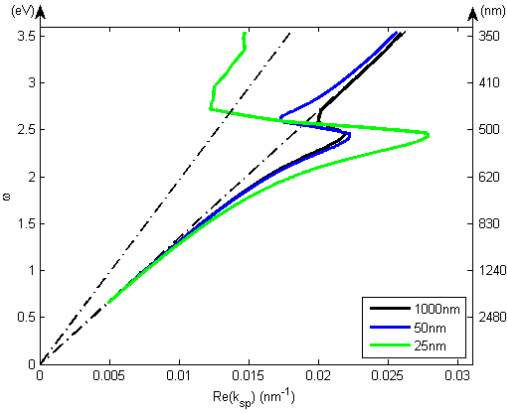


Figure B-19: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_x$  du mode résonant

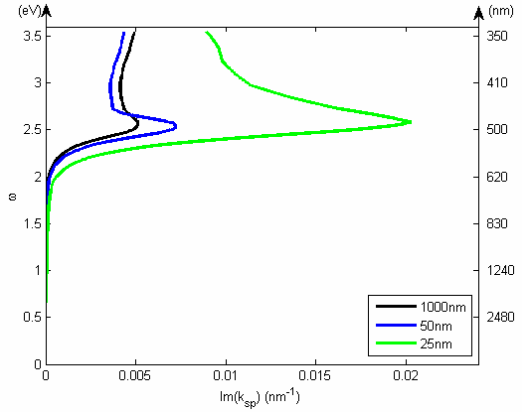


Figure B-20: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_x$  du mode résonant

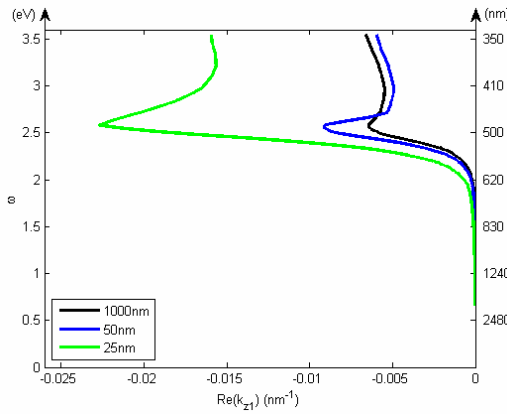


Figure B-21: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z1}$  du mode résonant

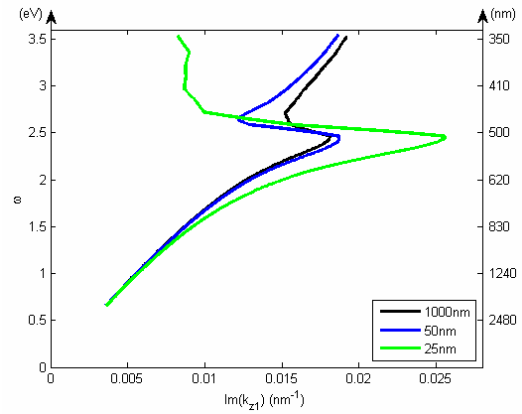


Figure B-22: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z1}$  du mode résonant

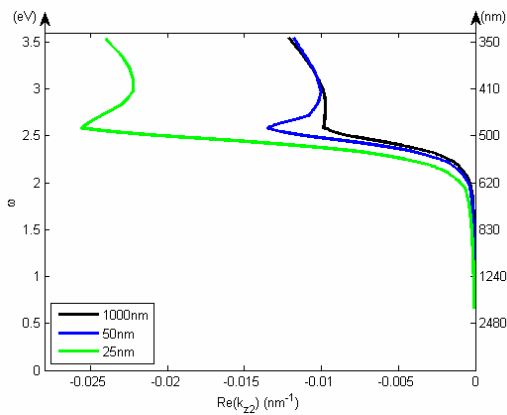


Figure B-23: Courbes de dispersion de la partie réelle de  $k_{z2}$  du mode résonant

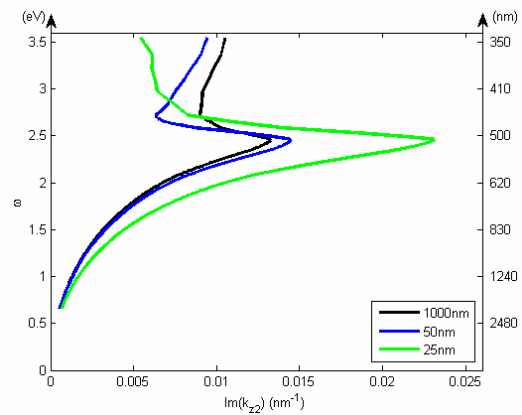


Figure B-24: Courbes de dispersion de la partie imaginaire de  $k_{z2}$  du mode résonant

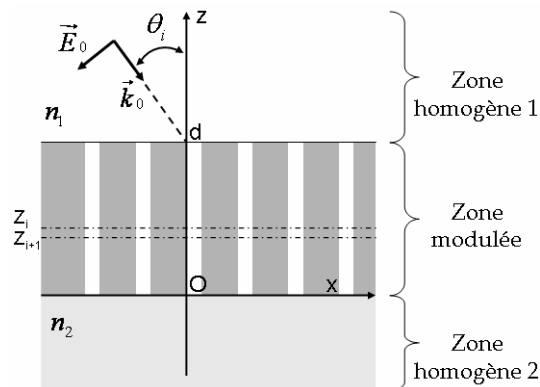




## Annexe C. La Méthode Différentielle

Cette annexe s'inspire largement des développements concernant la Méthode Différentielle présentés dans les thèses de Souraya Goumri-Said [Goumri-Said04] et Davy Gérard [Gérard04]. Je remercie donc très largement ces deux doctorants qui ont pris le temps d'en faire une description tout d'abord détaillée puis simplifiée, que le lecteur en quête d'informations plus complètes devrait consulter. En effet, si j'ai pris part au lancement des calculs et tout particulièrement au dépouillage et à l'analyse des résultats obtenus, je n'ai personnellement participé ni à l'élaboration, ni au développement et pas plus à l'écriture des codes de calcul. Je fus au sens strict un utilisateur du code développé au sein du laboratoire par L. Salomon. Je vais tout de même donner quelques bases mathématiques et la philosophie globale de cette méthode de calcul. Toutefois, je ne prétendrais bien sûr pas expliquer dans ces pages toutes les arcanes de la méthode. Pour de plus amples précisions, l'ouvrage de M. Nevière et E. Popov [Nevière03] fait à ce jour référence.

La méthode de calcul utilisée se base donc sur la Méthode Différentielle (MD) qui est développée à l'origine pour réaliser la modélisation de l'interaction d'ondes électromagnétiques avec des échantillons possédant une ou plusieurs périodicités. Pour cela, l'échantillon est divisé en 3 couches distinctes, les milieux homogènes du 'substrat' ( $n^{\circ}1$ ) et du 'superstrat' ( $n^{\circ}2$ ), et la zone modulée (Figure C-1). Le but de la MD est de calculer les amplitudes complexes des ondes transmises et réfléchies par la structure pour un champ électromagnétique incident  $(\vec{E}_0, \vec{H}_0, \vec{k}_0)$  donné. Ces amplitudes permettant ensuite de reconstruire le champ électromagnétique exact dans les 3 zones :



**Figure C-1: Schéma type de l'empilement simulé par Méthode Différentielle**

Les calculs sont principalement effectués en polarisation 'p' pour notre étude (champ électrique  $\vec{E}$  dans le plan  $Oxz$ ). La zone modulée définissant le réseau, périodique selon l'axe  $Ox$ , est bordée par deux zones homogènes, le substrat d'indice  $n_1$  et le superstrat d'indice  $n_2$ . La zone inhomogène est découpée en  $M$  sous-couches délimitées par les  $z_i$  plans pour les besoins du calcul. On définit le champ électromagnétique incident par sa longueur

d'onde dans le vide  $\lambda_0$  ( $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_0}$ ) et son angle d'incidence  $\theta_i$  par rapport à l'axe Oz. Dans les

deux zones homogènes, le champ  $H_y$  est décomposé selon un développement de Rayleigh.

On écrit alors  $H_y^i(x, z) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \left( \left\{ A_n^i e^{-j\beta_n^i z} + B_n^i e^{j\beta_n^i z} \right\} e^{j\alpha_n x} \right)$  avec  $i \in \{1, 2\}$ .  $\alpha_n = k_0 n_1 \sin(\theta_i) + \frac{2\pi n}{p}$

est la composante du vecteur d'onde selon l'axe Ox. On exprime les composantes normales correspondantes à l'aide de l'équation de dispersion de chacun des milieux

$\beta_n^i = \sqrt{k_0^2 n_i^2 - \alpha_n^2}$ ,  $i \in \{1, 2\}$ . La détermination du signe des composantes normales est

imposée par la relation  $\text{Re}(\beta_n^i) + \text{Im}(\beta_n^i) > 0$ . Pour les besoins du calcul, les développements sont tronqués au Nième ordre. On conserve donc uniquement 2N+1 ordres. On définit enfin

les coefficients de transmission en énergie R et T du réseau tels que :  $R = \sum_{n \in \{\text{radiatifs}\}} |A_n^1|^2 \frac{\beta_n^1}{\beta_0^1}$  et

$$T = \sum_{n \in \{\text{radiatifs}\}} |A_n^2|^2 \frac{\beta_n^2}{\beta_0^1}.$$

Il s'agit donc de définir tous les termes de la somme discrète qui permettent de calculer les champs  $H_y$  dans chacun des milieux. Pour le calcul, les différentes composantes des vecteurs d'onde sont définies par l'onde incidente et la période  $p$  de la zone modulée à partir de la formule des réseaux et de l'équation de propagation dans chacun des milieux. Il ne reste donc plus qu'à calculer les amplitudes complexes de chacune des ondes transmises et réfléchies dans les deux milieux homogènes. Ce sont ces amplitudes qui sont calculées par la MD. On commence en calculant la matrice de transmission pour la jème sous-couche de la zone modulée définie entre les plans  $z^{j-1}$  et  $z^j$ . Dans chaque sous-couche, le calcul utilise l'algorithme de Runge-Kutta. On calcule ainsi pour les champs électrique et magnétique la transmission et la réflexion de cette sous-couche élémentaire. Le calcul est ensuite répété pour toutes les autres sous-couches. Il est ainsi finalement possible de relier les différentes composantes du champ électromagnétique de la zone homogène 1 à la zone homogène 2 grâce aux relations de continuité appliquées sur les interfaces en  $z=0$  et  $z=d$ .

Des problèmes numériques peuvent survenir pendant les différentes étapes de calcul. En effet, quand la hauteur de la zone modulée est trop importante ( $d > \lambda_0/2$ ) ou lorsque les différences d'indice de réfraction sont trop importantes comme c'est le cas avec les métaux, la méthode devient instable. Ces instabilités sont dues à la propagation sur de longues distances d'ondes aux composantes évanescentes de courte portée. Ces problèmes dus à l'utilisation d'un nombre fini de digit pour le calcul [Nevière91] sont résolus grâce à l'utilisation des algorithmes R- et S-Matrix. Cependant, ces algorithmes ne sont pas suffisants pour résoudre tous les problèmes numériques rencontrés en polarisation 'p' pour les matériaux tels que les métaux au cœur de notre étude. En 1996, Lifeng Li a montré qu'il

apparaissait dans cette polarisation un problème supplémentaire lié à la faible vitesse de convergence du produit des séries de Fourier utilisées lors des calculs numériques. Une nouvelle formulation de la méthode basée sur une représentation correcte des produits tronqués de séries de Fourier de fonctions discontinues a été proposée par le même auteur [Li96]. Bien que les équations dérivées soient plus compliquées que celles obtenues lors de la formulation classique, le taux de convergence par rapport au nombre de modes utilisé lors des calculs est plus rapide pour des réseaux de formes arbitraires et particulièrement les réseaux lamellaires. Le taux de convergence approche celui obtenu en polarisation 's' ou ces problèmes ne surviennent pas.

Enfin, lorsque le réseau est également périodique selon l'axe Oz, comme c'est le cas de la géométrie à flancs droits des réseaux simulés, il est possible de limiter le nombre de sous-couches à calculer [Tervo01]. En effet, toutes les sous-couches équivalentes ont la même matrice de transmission. Dans le cas d'un réseau à flanc droit, on réalise alors le calcul pour une première sous-couche, puis pour une sous-couche d'épaisseur double et ainsi de suite. On diminue ainsi le nombre de calculs à effectuer à cette étape d'un facteur environ  $m/2^m$ .

Une fois les coefficients de Rayleigh déterminés pour la composante magnétique du champ dans les deux zones homogènes, il est possible de reconstruire le champ électromagnétique complet dans ces deux zones en utilisant les équations de Maxwell.



## Bibliographie

- [Abbe1873] E. Abbe, *Beiträge zur Theorie des Mikroskops und der mikroskopischen Wahrnehmung*, Archiv. f. Mikroskop. Anat. **9**, 413 (1873)
- [Abraham82] E. Abraham et S.D. Smith, *Optical bistability and related devices*, Rep. Prog. Phys. **45**, 815 (1982)
- [Adams81] M.J. Adams, *An introduction to optical waveguides*, J. Wiley & Sons (1981)
- [Agranovich & Mills82] V.M. Agranovich et D.L. Mills, *Surface Polaritons*, North-Holland, Amsterdam (1982)
- [Agrawal79] G.P. Agrawal et H.J. Carmichael, *Optical bistability through nonlinear dispersion and absorption*, Phys. Rev. A **19**, 2074 (1979)
- [Aigouy07] L. Aigouy, P. Lalanne, J. P. Hugonin, G. Julié, V. Mathet et M. Mortier, *Near-Field Analysis of Surface Waves Launched at Nanoslit Apertures*, Phys. Rev. Lett. **98**, 153902 (2007)
- [AlHazen] Ibn al-Haytam dit Al Hazen, *Opticae Thesaurus* (~1000) traduit par Risner en 1572, numérisé et consultable sur [www-scd-ulp.u-strasbg.fr](http://www-scd-ulp.u-strasbg.fr).
- [Almeida04a] V.R. Almeida et M. Lipson, *Optical bistability on a silicon chip*, Opt. Letters **29**, 2387 (2004)
- [Almeida04b] V.R. Almeida, C.A. Barrios, R.C. Panepucci, et M. Lipson, *All-optical control of light on a silicon chip*, Nature **431**, 1081 (2004)
- [Ash72] E.A. Ash et G. Nicholls, *Super-resolution aperture scanning microscope*, Nature **237**, 510 (1972)
- [Ashcroft & Mermin02] N.W. Ashcroft et N.D. Mermin, *Physique des Solides*, EDP Sciences (2002)
- [Barclay05] P.E. Barclay, K. Srinivasan et O. Painter, *Nonlinear response of silicon photonic crystal microresonators excited via an integrated waveguide and fiber taper*, Opt. Express **13**, 801 (2005)
- [Barenz96] J. Barenz, O. Hollricher et O. Marti, *An easy-to-use nonoptical shear-force distance control for near-field optical microscopes*, Rev. Sci. Instrum. **67**, 1912 (1996)
- [Baron09] A. Baron, A. Ryasnyanskiy, N. Dubreuil, P. Delaye, Q. Vy Tran, S. Combrié, A. de Rossi, R. Frey et G. Roosen, *Light localization induced enhancement of third order nonlinearities in a GaAs photonic crystal waveguide*, Opt. Express **17**, 552 (2009)
- [Belotti10] M. Belotti, M. Galli, D. Gerace, L.C. Andreani, G. Guizzetti, A.R. Md Zain, N.P. Johnson, M. Sorel et R.M. de la Rue, *All-optical switching in silicon-on-insulator photonic wire nano-cavities*, Opt. Express **18**, 1450 (2010)

- [Berguiga01] L. Berguiga, *Etude et réalisation d'un microscope de champ proche sous asservissement de type shear-force. Application à l'étude en champ proche du vieillissement de fibres optiques*, Thèse de doctorat (2001)
- [Bérini01] P. Bérini, *Plasmon-Polariton waves guided by thin lossy metal films of finite width: Bound modes of asymmetric structures*, Phys. Rev. B **63**, 125417 (2001)
- [Bérini09] P. Bérini, *Long-range surface plasmon polaritons*, Advances in Optics and Photonics, **1**, 484 (2009)
- [Betzig92] E. Betzig, P. L. Finn et J. S. Weiner, *Combined shear force and near-field scanning optical microscopy*, Appl. phys. lett. **60**, 2484 (1992)
- [Binnig82] G. Binnig et H. Röhrer, *Scanning tunneling microscopy*, Helv. Phys. Acta. **55**, 726 (1982)
- [Binnig86] G. Binnig, C.F. Quate et C. Gerber, *Atomic Force Microscope*, Phys. Rev. Lett. **56**, 930 (1986)
- [Boardmann82] A.D. Boardman, *Electromagnetic Surface Modes*, J.Wiley & Sons Ltd (1982)
- [Born&Wolf80] N. Born et E. Wolf, *Principles of Optics*, Cambridge University Press, Cambridge (1980)
- [Bravo-Abad07] J. Bravo-Abad, A. Rodriguez, P. Bermel, S. G. Johnson, J. D. Joannopoulos et M. Soljacic, *Enhanced nonlinear optics in photonic-crystal microcavities*, Opt. Express **15**, 16161 (2007)
- [Brissinger09] D. Brissinger, B. Cluzel, A. Coillet, C. Dumas, P. Grelu et F. de Fornel, *Near-field control of optical bistability in a nanocavity*, Phys. Rev. B **80**, 033103 (2009)
- [Brissinger10] Accepté, en cours de publication dans Ultramicroscopy (2011)
- [Bristow07] A.D. Bristow, N. Rotenberg et H.M. van Driel, *Two-photon absorption and Kerr coefficients of silicon for 850-2200 nm*, Appl. phys. lett. **90**, 191104 (2007)
- [Burke86] J. J. Burke, G. I. Stegeman, et T. Tamir, *Surface-polariton-like waves guided by thin, lossy metal films*, Phys. Rev. B **33**, 5186 (1986)
- [Burresti09a] M. Burresti, D. Van Oosten, T. Kampfrath, H. Schoenmaker, R. Heidman, A. Leinse et L. Kuipers, *Probing the magnetic field of light at optical frequencies*, Science **326**, 550 (2009)
- [Burresti09b] M. Burresti, T. Kampfrath, D. Van Oosten, J.C. Prangsma, B.S. Song, S. Noda et L. Kuipers, *Active control of light trapping by means of local magnetic coupling*, arXiv:0911.2147v1 (2009)
- [Cai09] W. Cai et V. Shalaev, *Optical Metamaterials: Fundamentals and Applications*, Springer (2009)

- [Chong04] H.M.H. Chong et R.M. De La Rue, *Tuning of Photonic Crystal Waveguide Microcavity by Thermo-optic Effect*, IEEE Photonics Technol. Lett. **16**, 1528 (2004)
- [Cluzel05] B. Cluzel, *Réalisation et imagerie par sonde locale de cristaux photoniques en silicium sur isolant*, Thèse de doctorat (2005)
- [Cluzel08] B. Cluzel, L. Lalouat, P. Velha, E. Picard, D. Peyrade, J.C. Rodier, T. Charvolin, P. Lalanne, F. de Fornel et E. Hadji, *A near-field actuated optical nanocavity*, Opt. Express **16**, 279 (2008)
- [Combrié08] S. Combrié, A. De Rossi, Q. V. Tran et H. Benisty, *GaAs photonic crystal cavity with ultrahigh Q: microwatt nonlinearity at 1.55  $\mu\text{m}$* , Opt. Lett. **33**, 1908 (2008)
- [Courjon01] D. Courjon et C. Bainier, *Le Champ Proche Optique, Théorie et Application*, Springer (2001)
- [Cowan03] A.R. Cowan et J. F. Young, *Optical bistability involving photonic crystal microcavities and Fano line shapes*, Phys. Rev. E **68**, 046606 (2003)
- [Dawson01] P. Dawson, B.A.F. Puygranier et J.-P. Goudonnet, *Surface plasmon polariton propagation length: A direct comparison using photon scanning tunneling microscopy and attenuated total reflection*, Phys. Rev. B **63**, 205410 (2001)
- [deFornel97] F. de Fornel, *Les onde évanescentes*, Eyrolles (1997)
- [Devaux03] E. Devaux, T.W. Ebbesen, J.-C. Weeber et A. Dereux, *Launching and decoupling surface plasmons via micro-gratings*, Appl. phys. Lett. **83**, 4936 (2003)
- [Dinu03] M. Dinu, F. Quochi et H. Garcia, *Third-order nonlinearities in silicon at telecom wavelengths*, Appl. Phys. Lett. **82**, 2954 (2003)
- [Dionne05] J.A. Dionne, L.A. Sweatlock, H.A. Atwater et A. Polman, *Planar metal plasmon waveguides: frequency-dependent dispersion, propagation, localization, and loss beyond the free electron model*, Phys. Rev. B **72**, 075405 (2005)
- [Dionne06] J.A. Dionne, L.A. Sweatlock, H.A. Atwater et A. Polman, *Plasmon slot waveguides: Towards chip-scale propagation with subwavelength-scale localization*, Phys. Rev. B **73**, 035407 (2006)
- [Dürig86] U. Dürig, D.W. Pohl et F. Rohner, *Near-Field Optical Scanning Microscopy*, J. Appl. Phys. **59**, 3318 (1986)
- [Ebbesen98] T.W. Ebbesen, H.J. Lezec, H.F. Ghaemi, T. Thio et P.A. Wolff, *Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays*, Nature **391**, 667 (1998)
- [Engelen08] R.J.P. Engelen, D. Mori, T. Baba et L. Kuipers, *Two Regimes of Slow-Light Losses Revealed by Adiabatic Reduction of Group Velocity*, Phys. Rev. Lett. **101**, 103901 (2008)



- [Forsmann88] F. Forsmann et D. Jäger, *Thermo-optical SEED devices: External control of nonlinearity, bistability and switching behaviour*, Appl. Phys. B, **45**, 151 (1988)
- [Foubert09] K. Foubert, L. Lalouat, B. Cluzel, E. Picard, D. Peyrade, F. de Fornel et E. Hadji, *An air slotted nanoresonator relying on coupled high Q small V Fabry Perot nanocavities*, Appl. Phys. Lett. **94**, 251111 (2009)
- [Foubert10] K. Foubert, manuscrit de thèse, à soutenir, (2010)
- [Fushman07] I. Fushman, E. Waks, D. Englund, N. Stoltz, P. Petroff, et J. Vučković, *Ultrafast nonlinear optical tuning of photonic crystal cavities*, App. Phys. Lett. **90**, 091118 (2007)
- [Gérard04] D. Gérard, *Etude en champ proche et champ lointain de composants périodiquement nanostructurés : cristaux photoniques et tamis à photons*, Thèse de doctorat (2004)
- [Gibbs85] H.M. Gibbs, *Optical bistability*, Academic Press, Orlando, FL (1985)
- [Goumri-Said04] S. Goumri-Said, *Contribution à l'étude de la formation des images optiques en microscopie champ proche optique : effet de la sonde en deux dimensions*, Thèse de doctorat (2004)
- [Gravel08] Y. Gravel et Y. Sheng, *Rigorous solution for the transient surface plasmon polariton launched by subwavelength slit scattering*, Opt. Express **16**, 21903 (2008)
- [Greffet97] J.J. Greffet et R. Carminati, *Image formation in near-field optics*, Prog. Surf. Sci. **56**, 133 (1997)
- [Grober94] R.D. Grober, T.D. Harris, J.K. Trautman et E. Betzig, *Design and implementation of a low temperature near-field scanning optical microscope*, Rev. Sci. Instrum. **65**, 626 (1994)
- [Grohs90] J. Grohs, M. Müller, A. Schmidt, A. Uhrig, C. Klingshirn et H. Bartelt, *On the possible use of photo thermal optical bistability as a temperature sensor*, Opt. Comm. **78**, 77 (1990)
- [Hennessy07] K. Hennessy, A. Badolato, M. Winger, D. Gerace, M. Atatüre, S. Gulde, S. Fält, E. L. Hu et A. Imamoglu, *Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot-cavity system*, Nature **445**, 896(2007)
- [Homola06] J. Homola et al, *Surface Plasmon Resonance Based Sensors*, Springer Series on Chemical Sensors and Biosensors Vol. 4, Springer Berlin Heidelberg (2006)
- [Hsu95] J.W.P. Hsu, M. Lee et B.S. Deaver, *A nonoptical tip-sample distance control method for near - field scanning optical microscopy using impedance changes in an electromechanical system*, Rev. Sci. Instrum. **66**, 3177 (1995)
- [Jackson75] J.D. Jackson, *Classical electrodynamics*, J. Wiley & Sons (1975)
- [Joannopoulos95] J.D. Joannopoulos, R.D. Meade et J.N. Winn, *Photonic crystals : molding the flow of light*, Princeton University Press (1995)

- [John87] S. John, *Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices*, Phys. Rev. Lett. **58**, 2486,(1987)
- [Johnson &Christy72] P. B. Johnson et R. W. Christy, *Optical constants of the noble metals*, Phys. Rev. B **6**, 4370 (1972)
- [Johnson99] S.G. Johnson, S. Fan, P.R. Villeneuve, J.D. Joannopoulos et L.A. Kolodziejski, *Guided modes in photonic crystal slabs*, Phys. Rev. B **60**, 5751 (1999)
- [Kalkum07] F. Kalkum, G. Gay, O. Alloschery, J. Weiner, H.J. Lezec, Y. Xie et M. Mansuripur, *Surface-wave interferometry on single subwavelength slit-groove structures fabricated on gold films*, Opt. Express **15**, 2613 (2007)
- [Karrai95] K. Karrai et R.D. Grober, *Piezoelectric tip-sample distance control for near field optical microscopes*, Appl. Phys. Lett. **66**, 1842 (1995)
- [Kihm09] H.W. Kihm, J.H. Kang, J.S. Kyoung, K.G. Lee, M.A. Seo et K.J. Ahn, *Separation of surface plasmon polariton from nonconfined cylindrical wave launched from single slits*, Appl. Phys. Lett. **94**, 141102 (2009)
- [Koenderink05] A.F. Koenderink, M. Kafesaki, B.C. Buchler et V. Sandoghdar, *Controlling the Resonance of a Photonic Crystal Microcavity by a Near-Field Probe*, Phys. Rev. Lett. **95**, 153904 (2005)
- [Kretschmann68] E. Kretschmann et H. Raether, *Radiative decay of non-radiative surface plasmons excited by light*, Z. Naturforsch. **23a**, 2135 (1968)
- [Kwan02] A. Kwan, J.M. Dudley, E. Lantz, *Who really discovered Snell's Law*, Phys. World **15**, 64 (2002)
- [Lalanne05] P. Lalanne, J.-P.Hugonin et J.C. Rodier, *Theory of Surface Plasmon Generation at Nanoslit Apertures*, Phys. Rev. Lett. **95**, 263902 (2005)
- [Lalanne09] P. Lalanne, J.-P.Hugonin, H.T. Liu et B. Wang, *A microscopic view of the electromagnetic properties of sub- $\lambda$  metallic surfaces*, Surf. Sci. Rep. **64**, 453 (2009)
- [Lalouat07] L. Lalouat, B. Cluzel, P. Velha, E. Picard, D. Peyrade, J.P. Hugonin. P. Lalanne, E. Hadji et F. de Fornel, *Near-field interactions between a subwavelength tip and a small-volume photonic-crystal nanocavity*, Phys Rev. B **76**, 041102 (R) (2007)
- [Lalouat08a] L. Lalouat, B. Cluzel, F. de Fornel, P. Velha, P. Lalanne, D. Peyrade, E. Picard, T. Charvolin et E. Hadji, *Subwavelength imaging of light confinement in high Q small V photonic crystal nanocavity*, Appl. Phys. Lett. **92**, 111111 (2008)
- [Lalouat08b] L. Lalouat, *Interaction en champ proche entre une sonde nanométrique et le champ de composants à cristal photonique :-interaction faible, microscopie spatialement hautement résolue. -interaction forte, contrôle des propriétés du composant. Thèse de doctorat (2008)*

- [Lévêque07] G. Lévêque, O.J.F. Martin et J. Weiner, *Transient behavior of surface plasmon polaritons scattered at a subwavelength groove*, Phys. Rev. B, **76**, 155418 (2007)
- [Li96] L. Li, *Use of Fourier series in the analysis of discontinuous periodic structures*, J. Opt. Soc. Am. A **13**, 1870 (1996)
- [Lin07] Q. Lin, O.J. Painter et G.P. Agrawal, *Nonlinear optical phenomena in silicon waveguides: modelling and applications*, Opt. Express **15**, 16604 (2007)
- [Liu08] H. Liu et P. Lalanne, *Microscopic theory of the extraordinary optical transmission*, Nature **452**, 728 (2008) et informations complémentaires.
- [Maier07] S.A. Maier, *Plasmonics, Fundamentals and Applications*, ed. Springer (2007)
- [Märki06] I. Märki, M. Salt, et H.P. Herzig, *Tuning the resonance of a photonic crystal microcavity with an AFM probe*, Opt. Express **14**, 2969 (2006)
- [Massey84] G.A. Massey, *Microscopy and pattern generation with scanned evanescent waves*, Appl. Opt. **23**, 658 (1984)
- [Maxwell1865] J.C. Maxwell, *A dynamical theory of the Electromagnetic field*, Phil. Trans. R. Soc. Lond. **155**, 459-512 (1865)
- [Méndez97] E.R. Méndez, J.J. Greffet et R. Carminati, *On the equivalence between the illumination and collection modes of the scanning near-field optical microscope*, Opt. Comm. **142**, 7 (1997)
- [Mujumdar07] S. Mujumdar, A.F. Koenderink, T. Sunner, B.C. Buchler, M. Kamp, A. Forchel et V. Sandoghdar, *Near-field imaging and frequency tuning of a high-Q photonic crystal membrane microcavity*, Opt. Express **15**, 17214 (2007)
- [Mulligan98] J.F. Mulligan, *Who were Fabry and Perot?*, Am. J. Phys. **66**, 797 (1998)
- [Nevière80] M. Nevière, *The homogeneous problem* chap.5 dans *Electromagnetic Theory of Gratings*, R.Petit, ed. Springer-Verlag (1980)
- [Nevière91] M. Nevière, *Multilayer coated gratings for x-ray diffraction: differential theory*, J. Opt. Soc. Am. A **8**, 1468 (1991)
- [Nevière03] M. Nevière et E. Popov, *Light propagation in periodic media: differential theory and design*, Marcel Dekker, New York (2003)
- [Notomi05] M. Notomi, A. Shinya, S. Mitsugi, G. Kira, E. Kuramochi et T. Tanabe, *Optical bistable switching action of Si high-Q photonic-crystal nanocavities*, Opt. Express, **13**, 2678 (2005)
- [Novotny07] L. Novotny, *The history of Near-field Optics*, adapted from, *Progress in Optics* **50**, E. Wolf (ed.) chapter 5, 137 (2007)
- [Otto68] A.Otto, *Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection*, Z. Physik **216**, 398 (1968)

- [Oulton09] R.F. Oulton, V.J. Sorger, T. Zentgraf, R.-M. Ma, C. Gladden, L. Dai, G. Bartal et X. Zhang, *Plasmon lasers at deep subwavelength scale*, *Nature* **461**, 629 (2009)
- [Park04] H.-G. Park, S.-H. Kim, S.-H. Kwon, Y.-G. Ju, J.-K. Yang, J.-H. Baek, S.-B. Kim et Y.-H. Lee, *Electrically driven single-cell photonic crystal laser*, *Science* **305**, 1444 (2004)
- [Pendry00] J.B. Pendry, *Negative refraction makes a perfect lens*, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3966 (2000)
- [Perez01] J.-P. Pérez, R. Carles, R. Fleckinger, *Électromagnétisme: fondements et applications*, Dunod (2001)
- [Perez04] J.-P. Pérez, *Optique : Fondements et applications*, Dunod (2004)
- [Pohl84] D.W. Pohl, W. Denk et M. Lanz, *Optical stethoscopy : image recording with resolution  $\lambda/20$* , *Appl. Phys. Lett.* **44**, 651 (1984)
- [Radko08] I.P. Radko, S.I. Bozhevolnyi, G. Brucoli, L. Martín-Moreno, F.J. García-Vidal et A. Boltasseva, *Efficiency of local surface plasmon polariton excitation on ridges*, *Phys. Rev. B* **78**, 115115 (2008)
- [Raether88] H. Raether, *Surface Plasmons*, Springer-Verlag, Berlin (1988)
- [Rayleigh1879] Lord Rayleigh, *Investigations in optics with special reference to the spectroscope*, *Phil. Mag.* (5), **8**, 261 (1879)
- [Renger07] J. Renger, S. Grafström et L.M. Eng, *Direct excitation of surface plasmon polaritons in nanopatterned metal surfaces and thin films*, *Phys. Rev. B* **76**, 045431 (2007)
- [Ritchie57] R.H. Ritchie, *Plasma losses by fast electrons in thin films*, *Phys. Rev.* **106**, 874 (1957)
- [Robinson08] J.T. Robinson et M. Lipson, *Far-field control of radiation from an individual optical nanocavity: Analogue to an optical dipole*, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 043902 (2008)
- [Salomon91] L. Salomon, *Théorie et mise au point d'un microscope à effet tunnel photonique*, Thèse de doctorat (1991)
- [Salomon01] L. Salomon, F. Grillot, A.V. Zayats et F. de Fornel, *Near-field distribution of optical transmission of periodic subwavelength holes in a metal film*, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1110 (2001)
- [Salomon02] L. Salomon, G. Bassou, H. Aourag J.P. Dufour, F. de Fornel, F. Carcenac et A.V. Zayats, *Local excitation of surface plasmon polaritons at discontinuities of a metal film: Theoretical analysis and optical near-field measurements*, *Phys. Rev. B* **65**, 125409 (2002)
- [Sauvan05a] C. Sauvan, *Etude de la propagation et du confinement de la lumière dans des nano-structures*, Thèse de doctorat (2005)

- [Sauvan05b] C. Sauvan, G. Lecamp, P. Lalanne, et J. P. Hugonin, *Modal-reflectivity enhancement by geometry tuning in Photonic Crystal microcavities*, *Opt. Express* **13**, 245 (2005)
- [Schmidt04] B. Schmidt, V. Almeida, C. Manolatu, S. Preble et M. Lipson, *Nanocavity in a silicon waveguide for ultrasensitive nanoparticle detection*, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 4854 (2004)
- [Schouten05] H.F. Schouten, N. Kuzmin, G. Dubois, T.D. Visser, G. Gbur, P.F.A. Alkemade, H. Blok, G.W.'t Hooft, D. Lenstra et E.R. Eliel, *Plasmon-Assisted Two-Slit Transmission: Young's Experiment Revisited*, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 053901 (2005)
- [Seidel04] J. Seidel, F. I. Baida, L. Bischoff, B. Guizal, S. Grafström, D. Van LAbeke et L. M. Eng, *Coupling between surface plasmon modes on metal films*, *Phys. Rev. B* **69**, 121405(R) (2004)
- [Sentenac06] A. Sentenac, P.C. Chaumet et K. Belkebir, *Beyond the Rayleigh Criterion: Grating Assisted Far-Field Optical Diffraction Tomography*, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 243901 (2006)
- [Shalaev07] V. M. Shalaev et S. Kawata (Editors), *Nanophotonics with Surface Plasmons*, Elsevier, (2007)
- [Shen84] Y.R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, J. Wiley and Sons (1984)
- [Sidorenko07] S. Sidorenko et O.J.F. Martin, *Resonant tunneling of surface plasmon-polaritons*, *Opt. Express* **15**, 6380 (2007)
- [Smith77] P.W. Smith et E.H. Turner, *A bistable Fabry-Perot resonator*, *Appl. Phys. Lett.* **30**, 280 (1977)
- [Soljagic02] M. Soljagic, M. Ibanescu, S.G. Johnson, Y. Fink et J.D. Joannopoulos, *Optimal bistable switching in nonlinear photonic crystals*, *Phys. Rev. E* **66**, 055601(R) (2002)
- [Soljagic04] M. Soljagic et J.D. Joannopoulos, *Enhancement of nonlinear effects using photonic crystals*, *Nat. Mater.* **3**, 211 (2004)
- [Sommerfeld1909] A. Sommerfeld, *Über die Ausbreitung der Wellen in der drahtlosen Telegraphie*, *Ann. der Phys.* **28**, 665 (1909)
- [Stöckle99] R. Stöckle, C. Fokas, V. Deckert, R. Zenobi, B. Sick, B. Hecht et U.P. Wild, *High-quality near-field optical probes by tube etching*, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 160 (1999)
- [Synge28] E.H. Synge, *Suggested method for extending microscopic resolution into ultra-microscopic region*, *Philos. Mag.* **6**, 356-362 (1928)
- [Tanabe07] T.Tanabe, M. Notomi, E. Kuramochi, A. Shinya et H. Taniyama, *Trapping and delaying photons for one nanosecond in an ultrasmall high-Q photonic-crystal nanocavity*, *Nature Photonics* **1**, 49 (2007)

- [Tervo01] J. Tervo, M. Kuittinen, P. Vahimaa, J. Turunen, T. Aalto, P. Heimala et M. Leppihalme, *Efficient Bragg waveguide-grating analysis by quasi-rigorous approach based on Redheffer's star product*, *Opt. Comm.* **198**, 265 (2001)
- [Toledo-Crow92] R. Toledo-Crow, P.C. Yang, Y. Chen et M. Vaez-Iravani, *Near-field differential scanning optical microscope with atomic force regulation*, *Appl. Phys. Lett.* **60**, 2957 (1992)
- [Uesugi06] T. Uesugi, B. Song, T. Asano et S. Noda, *Investigation of optical nonlinearities in an ultra-high-Q Si nanocavity in a two-dimensional photonic crystal slab*, *Opt. Express* **14**, 377 (2006)
- [Vahala03] K.J. Vahala, *Optical microcavities*, *Nature* **424**, 839 (2003)
- [VanLabeke97] D. Van Labeke, *La microscopie optique à sonde locale*, *Collection SFO* **5**, 151 (1997)
- [Velha06] P. Velha, J.C. Rodier, P. Lalanne, J.P. Hugonin, D. Peyrade, E. Picard, T. Charvolin et E. Hadji, *Ultracompact SOI ridge waveguide mirrors with high reflectance*, *App. Phys. Lett.* **89**, 171121 (2006)
- [Velha07] P. Velha, E. Picard, T.Charvolin, J. C. Rodier, P. Lalanne, D. Peyrade, *Ultra-High Q/V Fabry-Perot microcavity on SOI substrate*, *Opt. Express* **15**, 16090 (2007)
- [Velha08] P. Velha, *Ingénierie de mode en optique intégrée sur silicium sur isolant*. Thèse de doctorat (2008)
- [Verhagen06] E. Verhagen, A. L. Tchebotareva et A. Polman, *Erbium luminescence imaging of infrared surface plasmon polaritons*, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 121121 (2006)
- [Verhagen09] E. Verhagen, M. Spasenovic, A. Polman et L.K. Kuipers, *Nanowire plasmon excitation by adiabatic mode transformation*, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 203904 (2009)
- [Vienne08] G. Vienne, Y. Li, L. Tong, et Ph. Grelu, *Observation of a nonlinear microfiber resonator*, *Opt. Lett.* **33**, 1500 (2008)
- [Vigoureux03] J.-M. Vigoureux, *De l'onde évanescente de Fresnel au champ proche optique*, *Ann. de la Fond. L. de Broglie* **28**, 525 (2003)
- [Vigoureux92] J.M. Vigoureux et D. Courjon, *Detection of nonradiative fields in light of the Heisenberg uncertainty principle and the Rayleigh criterion*, *Appl. Opt.* **31**, 3170 (1992)
- [Wang09] B. Wang, L. Aigouy, E. Bourhis, J. Gierak, J. P. Hugonin, et P. Lalanne, *Efficient generation of surface plasmon by single-nanoslit illumination under highly oblique incidence*, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 011114 (2009)
- [Weidner07] E. Weidner, S. Combrié, A. De Rossi, Q.-V. Tran et S. Casette, *Nonlinear and bistable behavior of an ultrahigh-Q GaAs photonic crystal nanocavity*, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 101118 (2007)

- [Yablonovitch87] E. Yablonovitch, *Inhibited spontaneous emission in solid state physics and electronics*, Phys. Rev. Lett. **58**, 2059-2062 (1987)
- [Yeh88] P. Yeh, *Optical waves in layered media*, J. Wiley and Sons, NY (1988)
- [Yokoyama96] H. Yokoyama et K. Ujihara, *Spontaneous Emission and Laser Oscillation in Microcavities*, CRC Press Inc. (1996)
- [Yoshie04] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H.M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O.B. Shchekin et D.G. Deppe, *Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity*, Nature **432**, 200 (2004)
- [Zayats05] A.V. Zayats, I.I. Smolyaninov, and A.A. Maradudin, *Nano-optics of surface plasmon polariton*, Physics reports 408,131 (2005)
- [Zenneck1907] J. Zenneck, *Über die Fortpflanzung ebener electromagnetische Wellen langs einer ebenen Leiterfläche und ihre Beziehung zur drachtlosen Telegraphie*, Ann. d. Phys. **23**,846 (1907)
- [Zhang08] X. Zhang et Z. Liu, *Superlenses to overcome the diffraction limit*, Nature Materials **7**, 435 (2008)
- [Zizhin82] G.N. Zizhin, M.A. Moskalova, E.V. Shomina et V.A. Yakovlev, *Surface Electromagnetic Wave propagation on Metal Surface* chap.3 dans A.D. Boardman, *Electromagnetic Surface Modes*, John Wiley & Sons Ltd (1982)





**Résumé :** Avec l'évolution rapide des techniques de nanofabrication et les besoins croissants d'intégration et d'utilisation à moindre coût énergétique, l'étude et la manipulation de résonances électromagnétiques d'objets de faibles dimensions représentent des enjeux cruciaux. Un des objectifs de ce travail de thèse a donc été d'approfondir nos connaissances de l'interaction entre le champ électromagnétique et la matière. Dans ce but la réalisation conjointe d'expériences en champ proche optique et le développement numérique de modèles associés nous ont permis d'étudier différentes résonances électromagnétiques basées sur l'interaction lumière-matière au sein d'objets de dimensions sub-micrométriques.

Dans une première partie, ce manuscrit présente les phénomènes mis en jeu en microscopie champ proche optique et décrit le fonctionnement du microscope SNOM utilisé. La seconde partie est dédiée à l'étude de l'interaction d'une sonde champ proche avec une nano-cavité Fabry-Perot en régime non-linéaire. Dans un premier temps, on présente l'étude des non-linéarités de nano-cavités en Silicium à grand facteur de qualité et faible volume modal, démontrant ainsi l'obtention d'un régime de fonctionnement bistable pour de très faibles puissances. Dans un deuxième temps, on démontre la modulation possible via la sonde champ proche de ce régime de bistabilité. Enfin, on étudie dans la troisième partie de ce manuscrit les résonances de films minces métalliques. L'étude complète des modes propres et de l'excitation optique de cette structure a permis de connaître avec précision les modes résonants et les angles de Brewster du film mince. Cette étude a été prolongée expérimentalement par l'étude en champ proche optique des modes résonants de demi-films minces métalliques.

Lors de ces deux études, les mesures expérimentales ont été systématiquement accompagnées par l'analyse théorique et le développement numérique de modèles que les expériences réalisées ont permis de valider et de discuter.

**Mots clés :** champ proche optique passif et actif (SNOM), plasmonique, film mince, modes propres, résonance, angle de Brewster, micro-cavités, effets non-linéaires, modulation de bistabilité.

□ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □

**Abstract :** Within the quick nano-fabrication techniques evolution and the increasing needs in low space and energy opto-electronic functions on-chip integration, studies and control of electromagnetic resonances of sub-micrometric objects are crucial issues. One aim of this work was then to improve our knowledge of the light-matter interaction. To this end, optical near-field experiments and complementary numerical development of models have been performed to study electromagnetic resonances due to light-matter interaction in sub-micrometric resonators.

As an introduction, the first part of the manuscript presents the main phenomena involved in near-field optical microscopy and the used SNOM operation. The second part is dedicated to near-field tip/Fabry-Perot micro-resonator interaction in the non-linear regime. In this part, we first present the study of high-Q/small volume Silicon nano-cavity non-linearities, showing possible bistable operation at very low incident power. We then demonstrate the cavity stability modulation obtain with the near-field tip. In the third part of the manuscript, we consider thin metallic film resonances. As a beginning, we realize an exhaustive study of the film eigenmodes and then discuss the resonant optical excitation of the film as well as precise determination of Brewster angle. These theoretical studies have been extended experimentally with the optical near-field determination of the resonant modes of semi-infinite thin films.

For the different studies, experimental measures have been systematically associated with theoretical analyses and numerical developments of models, which have then been confirmed or discussed in light of the experimental results.

**Key words :** Passive and active near-field optic (SNOM), plasmonic, thin film, eigenmodes, resonance, Brewster angle, micro-cavity, non-linear effects, bistability modulation.