



Université Paris XI - UFR scientifique d'Orsay

Ecole Doctorale Ondes et Matière

SYNTHÈSE DE THÈSE DE DOCTORAT

Discipline : Physique

Tao WANG

pour obtenir le grade de Docteur de l'Université Paris XI

Excitation électrique de plasmons de surface avec un microscope à effet tunnel

Soutenue le 18 juillet 2012 devant le jury composé de :

M. Renaud BACHELOT	rapporteur
M ^{me} Elizabeth BOER-DUCHEMIN	(invitée)
M. Fabrice CHARRA	(invité)
M ^{me} Geneviève COMTET	directrice de thèse
M. Yannick DE WILDE	rapporteur
M. Christian GIRARD	examineur
M. Jean-Jacques GREFFET	examineur
M. Serge HUANT	examineur

Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay
Bâtiment 210, 91 405 Orsay

Excitation électrique de plasmons de surface avec un microscope à effet tunnel

Chapter 1 : Introduction

Le microscope à effet tunnel (STM) permet l'observation à l'échelle atomique de la topographie et des propriétés électroniques des surface. Peu de temps après l'invention du STM (1982), une émission lumineuse issue de la jonction tunnel pointe-surface d'argent a été observée(1988). Cette émission côté pointe a été attribuée à l'excitation de plasmons localisés sous la pointe lors des processus tunnel inélastiques. Ces plasmons localisés sont en effet couplés par la pointe elle-même au champ électromagnétique lointain. Quelques années plus tard (1991), l'excitation par pointe STM d'un film d'or déposé sur un prisme hémicylindrique s'est accompagnée d'une émission lumineuse côté prisme, émission directionnelle interprétée par le couplage radiatif des plasmons propagatifs créés, couplage rendu possible par la présence du verre d'indice plus grand que 1. Cependant, jusqu'à 2010, les études de lumière sous pointe STM ont été essentiellement centrées sur les informations topographiques et spectrales que peut apporter la détection radiative des plasmons localisés côté pointe.

Dans mes études de doctorat (2009 - 2012), nous avons étudié la nanosource de photons que constitue la nanocavité pointe STM - film d'or, source lumineuse à l'échelle atomique. Pour la première fois, nous avons pu imager les plasmons propagatifs et les plasmons localisés excités par effet tunnel inélastique par microscopie de fuite radiative, en associant un microscope à effet tunnel (STM) et un microscope optique inversé. Nous avons de plus utilisé les plasmons propagatifs produits par cette nanosource de photons (qui est aussi une nanosource de plasmons) pour réaliser des expériences de nano-optique mettant en jeu des nanotrous et des nanoparticules d'or.

Bénéficiant de la capacité de manipuler la lumière à l'échelle nanométrique, la recherche plasmonique connaît un essor considérable depuis une dizaine d'années. La manipulation de la lumière consiste essentiellement à confiner la lumière à l'échelle nanométrique (plasmons de surface localisés) et à modifier la relation de dispersion de la lumière (plasmons de surface propagatifs). Le développement des techniques de fabrication à l'échelle nanométrique (lithographie par faisceau d'électrons ou fraisage par faisceau d'ions focalisés) et le développement des techniques de synthèse des nanoparticules ont ouvert la voie à la fabrication de nouvelles structures métalliques à l'échelle nanométrique. En raison de ces possibilités, la plasmonique a trouvé des applications dans un large éventail de domaines d'étude tels la détection, l'imagerie, l'énergie et les transferts d'information par guide d'onde.

Chapter 2 : Contexte théorique et technique expérimentale

Dans le chapitre 2, nous introduisons le contexte théorique et le dispositif expérimental.

Nous donnons les bases théoriques essentielles à la compréhension des plasmons de surface. Nous définissons les plasmons polaritons de surface (SPP) et les SPP propagatifs à la surface de métaux nobles. Les SPP propagatifs sont des ondes électromagnétiques transverses aux vecteurs

d'onde complexes. La relation de dispersion de ces plasmons et leur longueur de propagation en fonction du vecteur d'onde des photons sont données pour une interface air/or et pour des structures sandwich air/film d'or/verre en fonction de l'épaisseur du film d'or (Figure 1). Ceci est très important pour comprendre les propriétés de propagation des SPP. Nous discutons également le principe de base de la microscopie de fuite radiative. Dans nos expériences, nous utilisons la microscopie de fuite radiative pour détecter et caractériser les plasmons de surface propagatifs.

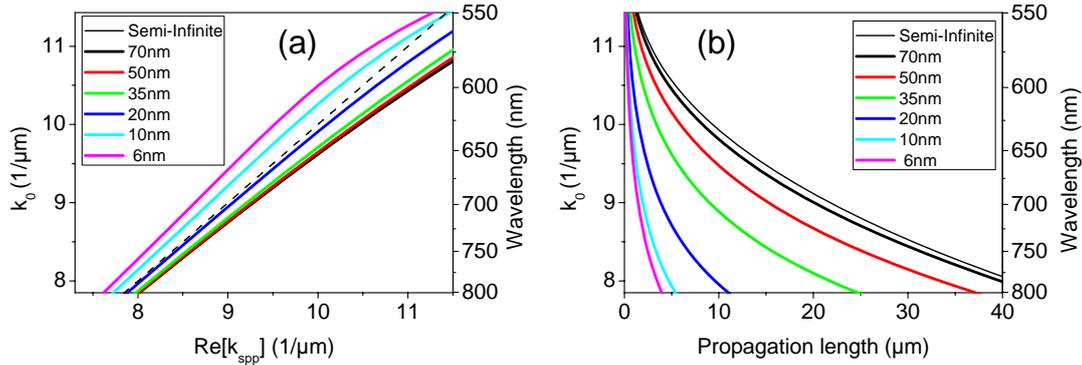


FIGURE 1 – Relations de dispersion (a) et longueurs de propagation en fonction du vecteur d'onde (b) d'ondes plasmoniques de surface se propageant le long d'un interface air/film d'or pour différentes épaisseurs des films d'or.

Nous introduisons ensuite le rayonnement d'un dipôle oscillant se trouvant à proximité d'une interface air-diélectrique et d'une interface air-film d'or sur verre. La distribution angulaire du rayonnement dipolaire est discutée. Pour une interface air-diélectrique la distribution angulaire du rayonnement dipolaire dépend de l'orientation du dipôle et de la distance du dipôle à la surface. Pour l'interface air-film d'or sur verre, la distribution angulaire du rayonnement du dipôle dépend aussi de l'épaisseur du film d'or et de la longueur d'onde du rayonnement (Figures 2 et 3). Ceci est très important pour nos études car l'émission de lumière sous pointe STM est souvent modélisée par un ensemble de dipôles localisés au niveau de la pointe, dipôles dont la distribution d'énergie est liée aux résonances de la cavité électromagnétique pointe-film.

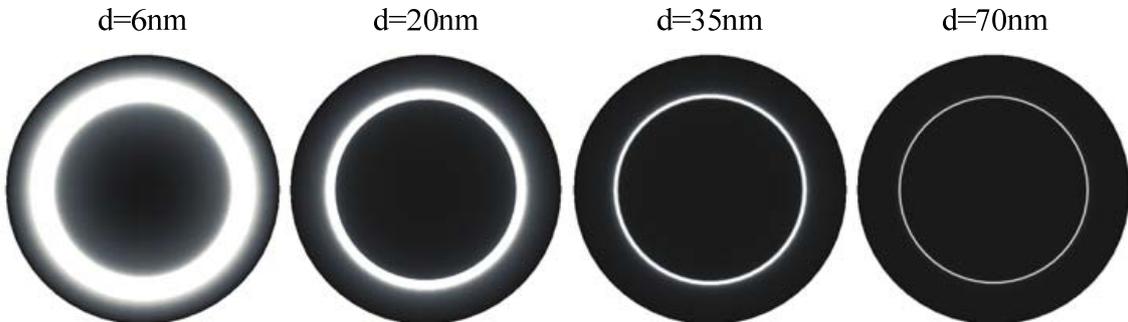


FIGURE 2 – Pour un dipôle oscillant vertical situé au-dessus de structures air-or-verre avec différentes épaisseurs d de film d'or, distribution angulaire du rayonnement émis à travers le verre sur un plan parallèle au film d'or. La longueur d'onde du dipôle est de 700 nm

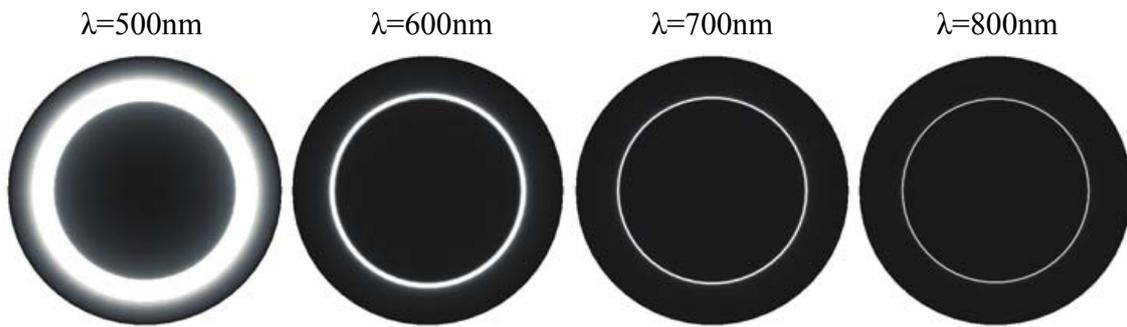


FIGURE 3 – Pour un dipôle oscillant vertical situé au-dessus d'une structure air-or-verre avec un film d'or d'épaisseur 50 nm, distribution angulaire du rayonnement émis à travers le verre sur un plan parallèle au film d'or pour différentes longueurs d'onde.

Le principe de la microscopie par fuite radiative est donné.

Nous présentons également notre dispositif expérimental (Figure 4) qui comporte deux parties principales : un microscope à effet tunnel (STM) et un microscope optique inversé. On les combine afin de pouvoir (i) exciter par effet tunnel inélastique les plasmons de surface de films minces d'or déposés sur une lamelle de verre et (ii) enregistrer sur une caméra CCD l'image par le microscope optique de l'interface air/or. Notre dispositif permet aussi d'imager le plan de Fourier et donc d'analyser la distribution angulaire de la lumière émise. L'étape préliminaire de calibration du plan de Fourier est présentée.

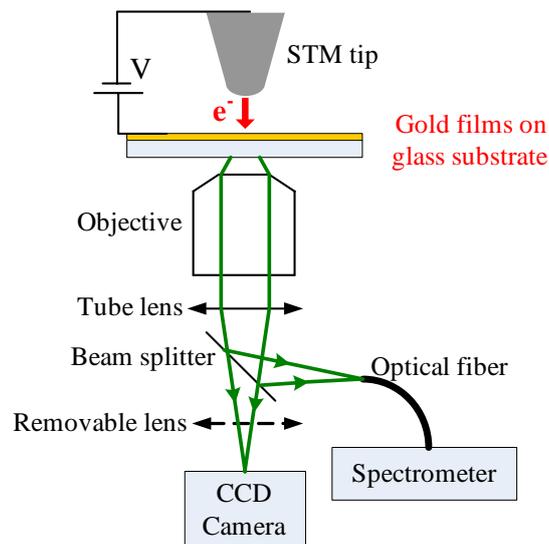


FIGURE 4 – Dispositif expérimental .

Chapter 3 : Excitation des plasmons de surface d'un film d'or par effet tunnel inélastique avec un STM

Dans le chapitre 3, nous montrons que les plasmons de surface propagatifs d'un film d'or peuvent être excités avec la pointe d'un STM.

Introduction

Les plasmons de surface polaritons (SPP) propagatifs dans les nanostructures métalliques offrent de nouvelles perspectives pour l'intégration de l'optique à l'échelle nanométrique. En particulier, les SPP propagatifs fournissent de nouvelles méthodes pour le transfert de l'information et de l'énergie à des dimensions inférieures à la limite de diffraction. Il a été montré que photons du visible et faisceaux d'électrons de haute énergie (> 30 keV) peuvent exciter des plasmons de surface qui se propagent sur des nanofils et nanorubans de métal noble. Récemment, l'utilisation d'un nanodiamant comme source de champ proche optique a ouvert la possibilité d'une plasmonique quantique. L'excitation électrique de plasmons de surface propagatifs par effet tunnel inélastique avec la pointe d'un microscope à effet tunnel est une méthode envisageable pour l'excitation de plasmons propagatifs. avec trois avantages uniques et spécifiques : (i) l'effet tunnel inélastique peut être extrêmement localisé (jusqu'à l'échelle picométrique), (ii) l'effet tunnel inélastique n'est pas associé à un bruit lumineux parasite, et (iii) le STM peut être facilement couplé à des dispositifs optiques pour la détection de l'émission de photons. En dépit de ces avantages, l'excitation de PSP propagatifs sur des surfaces de métaux nobles avec la pointe du STM n'a pas été clairement démontré jusqu'à présent. En effet, les études d'émission lumineuse sous pointe STM concernent l'émission côté pointe, qui est aussi le côté de l'interface air/film d'or où le couplage radiatif des plasmons localisés par la pointe est possible, mais où le couplage radiatif des plasmons propagatifs n'est pas possible (à moins d'augmenter la rugosité du film métallique). Dans ce chapitre, nous détectons à travers l'échantillon la lumière résultant d'une excitation par pointe STM d'un film d'or de 35 nm déposé sur une lamelle de quartz (conditions STM 2.8 V et 6 nA).

Résultats

L'émission de photons à travers un film d'or de 35 nm déposé sur lamelle de quartz possède (i) une distribution spatiale radiale à dépendance exponentielle s'étendant au-delà de $10 \mu\text{m}$ et (ii) une distribution angulaire très étroite et centrée légèrement au-dessus de l'angle critique. Ceci montre sans ambiguïté que la pointe du STM excite sur le film d'or des plasmons de surface propagatifs avec des longueurs de propagation de l'ordre de $10 \mu\text{m}$. Le spectre en longueur d'onde de ces plasmons est large (150 nm), centré à 700 nm. Le spectre acquiert une composante haute énergie (600 nm) quand la pointe en W est remplacée par une pointe d'Ag, suggérant que l'émission localisée est associée à une résonance de la cavité pointe-film d'or.

Conclusion

L'effet tunnel inélastique entre pointe STM et film d'or produit à la fois des plasmons localisés sous la pointe et des plasmons propagatifs le long du film. Le processus de création des plasmons propagatifs est très efficace. Cette capacité d'exciter très localement avec une résolution spatiale inférieure au nanomètre des plasmons de surface propagatifs offre des perspectives intéressantes pour une association de la nanoélectronique et de la nanophotonique.

Chapter 4 : Influence de la pointe sur les modes de plasmons de surface excités sur films d'or par STM

Introduction

Le rôle des caractéristiques de la pointe STM, ainsi que son matériau sur l'émission lumineuse par effet tunnel inélastique a été étudié théoriquement et expérimentalement depuis 1990. Les études concernaient essentiellement l'émission lumineuse côté pointe, émission attribuée au couplage radiatif par la pointe des plasmons localisés sous celle-ci. Il s'agissait essentiellement d'étudier l'efficacité du processus et la distribution spectrale de l'émission lumineuse. Dans ce chapitre 4, nous montrons que la dimension et la forme de l'apex de la pointe STM, ainsi que son matériau influencent le mode de plasmon de surface excité par STM sur film d'or.

Nous utilisons différents types de pointe, des pointes de W larges, des pointes de W fines et des pointes d'Ag (Figure 5), pour exciter des films d'or de différentes épaisseurs (6 nm, 35 nm, 50 nm

et 70 nm) (Figure 6).

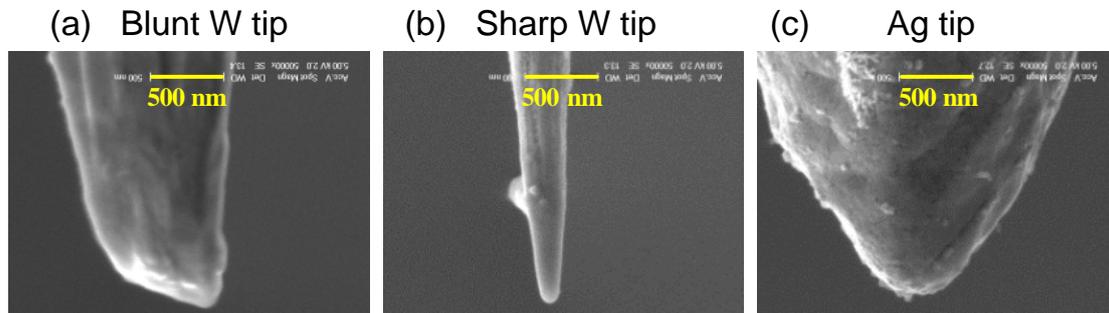


FIGURE 5 – Images par microscopie électronique à balayage (MEB) des trois types de pointe. Les rayons de courbure de l'apex des pointes sont respectivement de ~ 400 nm (a), ~ 70 nm (b) et ~ 400 nm (c).

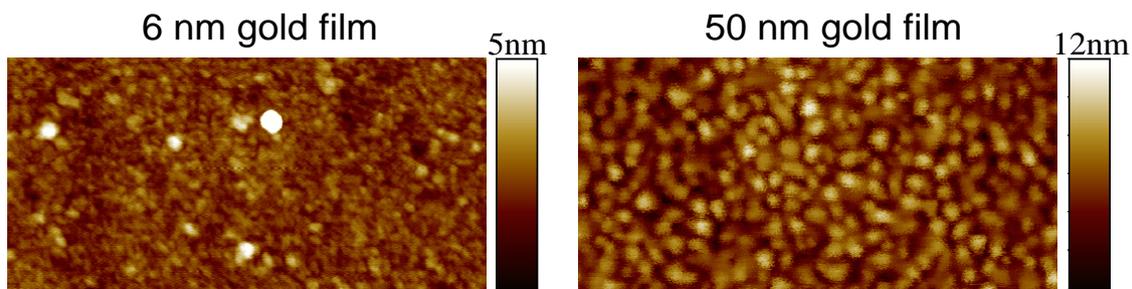


FIGURE 6 – Images AFM topographiques de films d'or d'épaisseurs (a) 6 nm and (b) 50 nm. La dimension de l'image AFM est de $1 \mu\text{m} \times 0.5 \mu\text{m}$.

Images de l'espace réel

Nous présentons les images des émissions lumineuses pour une large pointe en W sur des films d'or de 70 nm, 50 nm, 35 nm, 20 nm et 6 nm déposés sur des plaquettes de verre (conditions STM 2.8 V, 6 nA). On note des extensions spatiales de la lumière qui se réduisent avec l'épaisseur du film. On en déduit des distances de propagation des plasmons pour chaque épaisseur de film cohérentes avec les valeurs attendues pour des PSP propagatifs. (valeurs théoriques ou mesurées lors d'excitation par laser). Par contre, les distances de propagation mesurées ne dépendent pas du type de pointe utilisée (présentation d'un graphe longueur de propagation des plasmons en fonction de l'épaisseur du film pour les trois types de pointe). Ces deux observations confortent notre attribution de la lumière observée aux fuites radiatives de PSP propagatifs.

Partie centrale de l'image

Nous présentons trois zooms de la partie centrale des images des émissions lumineuses pour des pointes de W "grosses", des pointes de W "fines" et des pointes d'Ag sur un film d'or de 50 nm (Figure 7). L'intensité du pic central évolue avec le type de pointe comme l'efficacité lumineuse détectée côté pointe dans les expériences d'auteurs précédents. C'est une indication pour attribuer le pic central essentiellement aux plasmons localisés sous la pointe. Soulignons qu'ici, outre la mesure d'intensités, nous observons des images qui permettent d'attribuer le processus d'émission sous pointe STM à la présence d'un dipôle oscillant vertical (cas d'une pointe "fine" en W et cas d'une pointe en Ag) ou pas vertical (cas d'une "grosse" pointe en W).

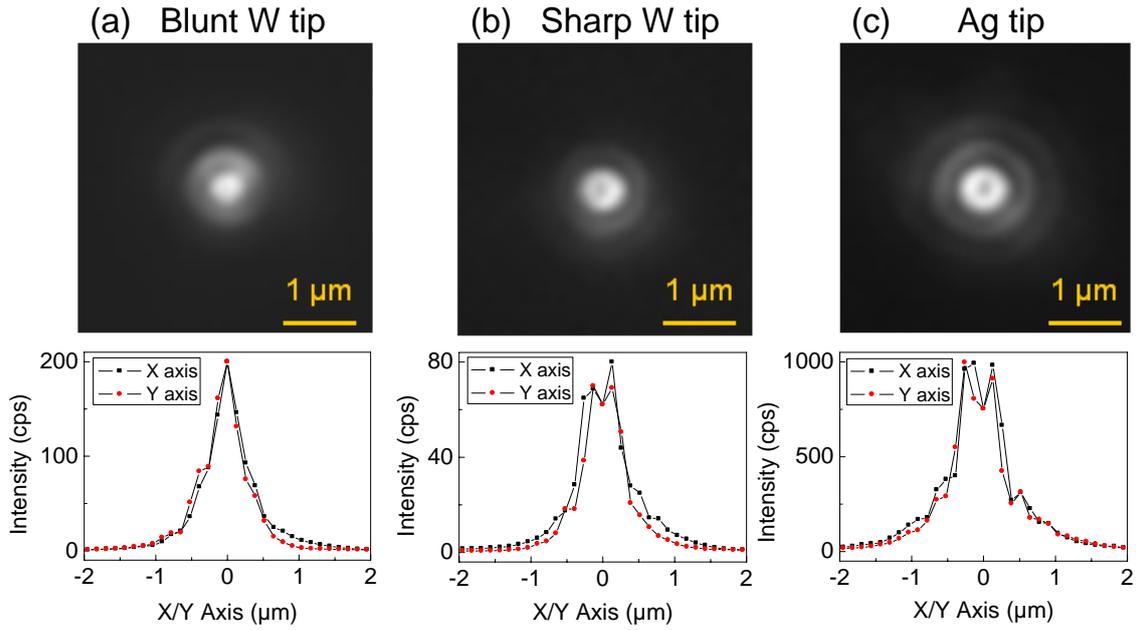


FIGURE 7 – Partie centrale des images de l'espace réel avec une pointe large en W (a), une pointe fine en W (b) and une pointe en Ag (c). Les coupes transversales associées sont présentées. Les images sont obtenues avec un film d'or de 50 nm. Les intensités indiquées dans les sections efficaces sont des moyennes sur plus de 70 images pour chaque type de pointe

Analyse de l'image globale

Les coupes transversales, $I(x)$ de l'image expérimentales ont été transformées en tenant compte du caractère radial de l'onde propagative. Nous avons reporté $\ln(I \cdot x)$ en fonction de x (voir Figure 8) et ceci pour les différentes épaisseurs de film et les différentes pointes. De façon remarquable, un comportement linéaire est observé à partir de $2 \mu\text{m}$ qui met en clairement en évidence le plasmon propagatif, tandis que la signature du plasmon localisé ($x < 2 \mu\text{m}$) est complètement différente. Ceci permet de déterminer quantitativement les contributions respectives des deux modes de plasmon et de mesurer précisément la distance de propagation des PSP propagatifs.

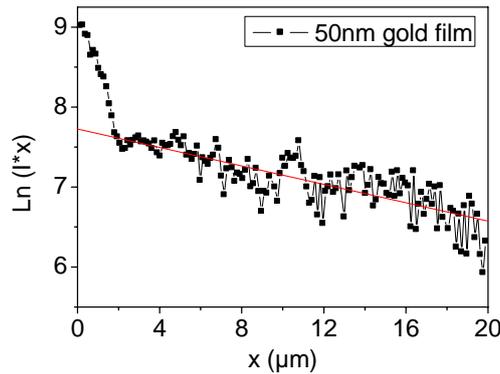


FIGURE 8 – La coupe transversale $I(x)$ de l'image dans le plan de Fourier a été transformée pour faire apparaître la décroissance exponentielle de l'onde radiale. La figure représente $\ln(I \cdot x)$ en fonction de x , distance d'observation à la pointe.

Images du plan de Fourier

Les images du plan de Fourier donnent la distribution angulaire de la lumière émise de l'espace objet. Nous présentons les images du plan de Fourier (Figure 9) pour une large pointe en W, une pointe fine de W et une pointe d'Ag sur des films d'or de 70 nm, 50 nm, 35 nm, 20 nm et 6 nm déposés sur des plaquettes de verre (conditions STM 2.8 V, 6 nA). Les pics fins sont attribués aux PSP propagatifs. Ils ont la position attendue. Il y a aussi présence d'un épaulement qui a une moindre contribution pour la pointe fine en W que pour la large pointe en W.

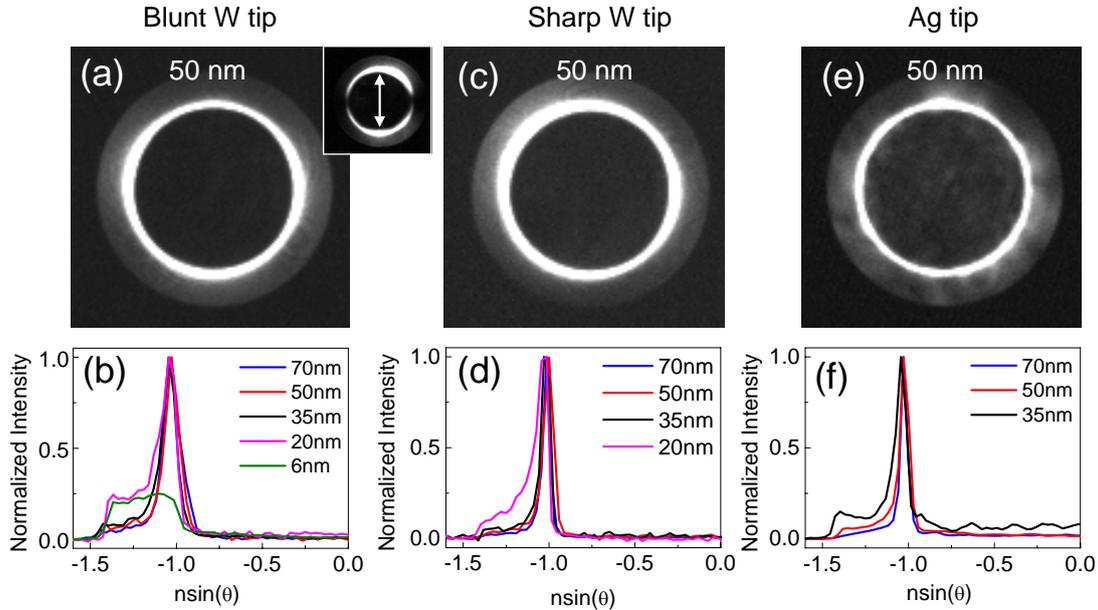


FIGURE 9 – Images dans le plan de Fourier de l'émission lumineuse excitée par une pointe large en W, une pointe fine en W et une pointe en Ag sur un film d'or de 50 nm. Les coupes transversales d'images du plan de Fourier sont présentée en (b) pour une pointe large en W sur films d'or de 6 nm à 70 nm en (d) pour une pointe fine en W sur films d'or de 20 nm à 70 nm et en (f) pour une pointe en Ag sur films d'or de 35 nm à 70 nm. En (b) la coupe transversale pour le film de 6 nm a été normalisée à 0.25 par une figure claire. L'encart de (a) est l'image dans le plan de Fourier avec un polariseur et la double flèche indique sa direction. La moitié seulement des coupes transversales est donnée pour une meilleure observation du lecteur.

Relation de dispersion des SPP déduite du plan de Fourier

Cinq images de Fourier pour une "grosse" pointe en W sur un film d'or de 50 nm ont été enregistrées successivement en positionnant cinq filtres à bande étroite (13 nm à 22 nm) devant la caméra CCD. En repérant les positions successives des pics attribués aux PSP propagatifs, nous avons pu tracer la courbe de dispersion des plasmons. L'accord avec la courbe calculée est excellent.

Plasmons propagatifs et localisés dans le plan de Fourier

Nous cherchons ici à quantifier les contributions respectives des plasmons localisés et propagatifs à partir des images du plan de Fourier. La contribution des plasmons propagatifs dans le plan de Fourier est claire : il s'agit de l'anneau (dans l'image du plan de Fourier) et du pic (dans la coupe transversale correspondante). Nous intégrons donc l'intensité du pic pour obtenir la contribution des plasmons propagatifs, Le reste constitue la contribution des plasmons localisés. Cette étude à été menée pour les différents types de pointe.

Sélection de plasmons propagatifs ou localisés par un choix de la pointe

La sélection de plasmons propagatifs ou localisés par un choix de la pointe s'appuie sur les mesures quantitatives des rapports d'intensité de plasmons localisés et propagatifs dans l'espace réel et dans l'espace de Fourier. Les résultats sont synthétisés sur la figure 10.

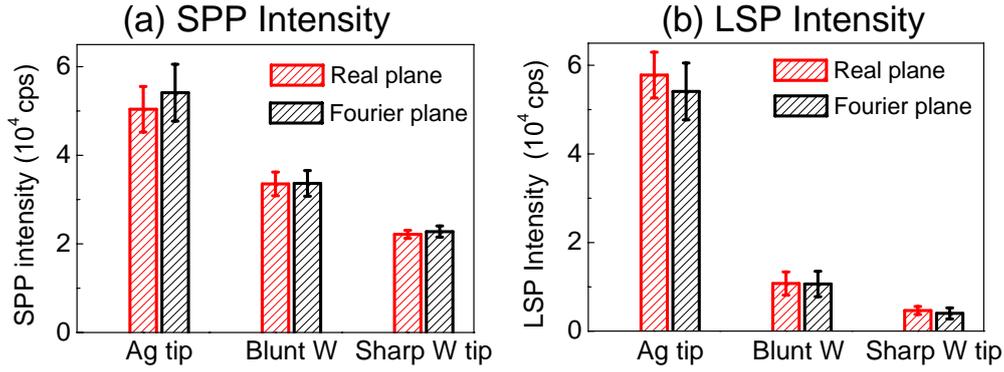


FIGURE 10 – Intensités par seconde des PSP propagatifs I_{SPP} (a) et des PSP localisés I_{LSP} (b) sur un film d'épaisseur 50 nm, moyennées sur un grand nombre de chaque type de pointe.

A partir des discussions précédentes, nous comprenons clairement que différents modes de plasmon sont excités sur film d'or par un effet tunnel inélastique sous pointe STM, à savoir des modes localisés et des modes propagatifs. Ces deux types de plasmon sont intéressants : les plasmons localisés ont une importance cruciale pour l'excitation d'émetteurs quantiques dans la nano-cavité formée par la pointe STM et le substrat, tandis que les plasmons propagatifs sont essentiels pour le transfert d'information à l'échelle nanométrique .

Spectres en longueur d'onde des plasmons excités par STM

Dans les conditions STM utilisées ($V=2.8$ V, $I=6$ nA), les spectres des plasmons obtenus avec l'objectif à huile pour les trois types de pointe sont similaires (centrés à 700 nm) quand l'épaisseur du film d'or est de 50 nm. Le spectre évolue avec l'épaisseur de l'échantillon, se décalant vers le bleu quand l'épaisseur augmente.

Simulation des images obtenues dans le plan de Fourier par le modèle du dipôle vertical

Le modèle du dipôle vertical est plus adapté aux pointes fines qu'aux pointes W larges (Figure 8).

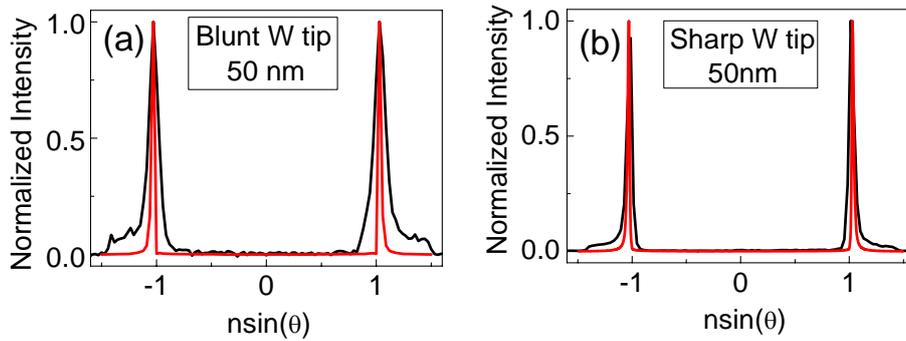


FIGURE 11 – Confrontation du modèle du dipôle vertical et des résultats obtenus dans le plan de Fourier pour une pointe W large (a) et une pointe W fine (b). Les courbes noires en (a) et (b) sont les coupes transversales des plans de Fourier obtenus avec un film d'or de 50 nm d'épaisseur. La césure brusque à grand angle est créée par l'ouverture numérique de l'objectif, 1.45. Le pic étroit observé à l'angle de Kretschmann est consistant avec la génération de PSP propagatifs. Les courbes rouges en (a) et (b) résultent de la modélisation de la jonction tunnel par un ensemble de dipôles oscillants verticaux. Il est clair que ce modèle est plus adapté pour la pointe fine et bien symétrique.

Conclusion

Pour la première fois nous avons caractérisé les modes de plasmons et mesuré leurs intensités relatives en imageant l'espace de Fourier et l'espace réel par microscopie de fuite radiative. Nous avons montré qu'en faisant varier la forme de la pointe et son matériau, nous pouvons exciter sélectivement un mode ou l'autre : une pointe large non-plasmonique (par exemple, une pointe large de W) est le meilleur choix pour l'excitation préférentielle de plasmons de surface propagatifs. Une pointe plasmonique' (par exemple une pointe en Ag) est recommandée pour l'excitation de plasmons de surface localisés. En outre, les calculs montrent que rapprocher la jonction tunnel STM d'un dipôle vertical est plus approprié pour les modes de plasmons propagatifs que localisés, mais ce modèle ne prend pas en compte les interactions pointe-films et les modes de pointe induits ou localisés. Ces résultats fournissent plus de contrôle sur le processus d'excitation plasmon STM, offre un aperçu des mécanismes physiques mis en jeu, et peuvent conduire à des perspectives intéressantes pour la plasmonique faible consommation d'énergie excitée électriquement.

Chapter 5 : Cohérence des plasmons de surface propagatifs excités par STM

Les plasmons polariton de surface (PSP) propagatifs excités par STM ont un spectre d'émission large bande. La détermination de la cohérence de ces plasmons est primordiale dans le contexte de leur utilisation future dans des dispositifs nano-optiques intégrant la plasmonique, tels les nano-antennes optiques. Dans les chapitres 3 et 4, pour la première fois, nous avons imagé la distribution spatiale des PSP propagatifs créés sur des films d'or par effet tunnel inélastique. Dans ce chapitre, pour la première fois, nous mesurons leur longueur de cohérence.

méthode

La méthode utilisée pour mesurer la longueur de cohérence des plasmons propagatifs s'appuie sur les études de cohérence lumineuse. Les expériences d'Young utilisaient deux fentes pour séparer le faisceau lumineux en deux parties et les recombinaient ensuite pour observer leur interférence. Nous utilisons deux nanotrous pour séparer le faisceau plasmonique circulaire lancé par la pointe STM (Figure 12). Les nanotrous diffusent radiativement les plasmons et nous observons les interférences des faisceaux lumineux diffusés dans le plan de Fourier.

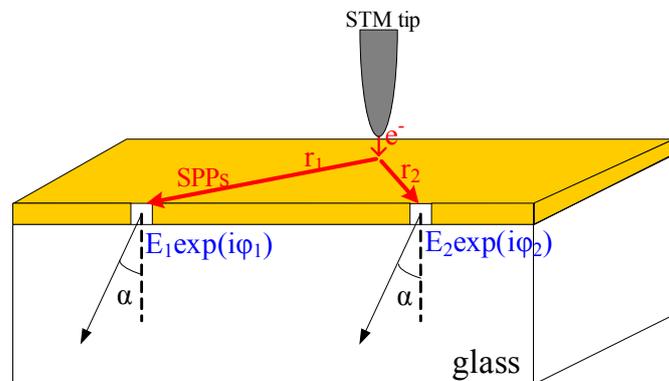


FIGURE 12 – Principe de notre expérience. Les deux nanotrous diffusent en champ lointain les PSP propagatifs créés par la pointe STM.

Il y aura deux déphasages à prendre en compte pour le calcul des interférences lumineuses que nous observerons : un déphasage plasmonique si la pointe n'est pas à égale distance des nanotrous, un déphasage photonique si l'émission photonique n'est pas normale à l'échantillon. Ces déphasages s'ajoutent. Nous avons d'abord placé la pointe sur la médiatrice des nanotrous et déterminé les paramètres à prendre en compte pour simuler la figure d'interférences (diamètre des trous, phénomène de battement puisque le faisceau de plasmons est large bande). Nous avons ensuite placé la pointe "ailleurs" pour créer une différence de chemin plasmonique et mesurer la longueur de cohérence des plasmons.

échantillon

Pour les expériences, nous utilisons un film opaque de 200 nm contenant des nanotrous uniques et des paires de nanotrous de même diamètre isolés les uns des autres par une distance bien supérieure à la distance de propagation des plasmons. Les nanotrous ont des diamètres de 250 nm, 500 nm ou 1 μm et leurs distances dans les nanopaires peuvent être de 2 μm , 4 μm ou 6 μm . Les échantillons de grande qualité sont fabriqués au "Pôle Nanofab" de l'Institut Néel à Grenoble. Les nanotrous sont gravés par faisceau d'ions focalisés. L'échantillon est d'abord observé par microscopie électronique à balayage à Grenoble. Puis nous en faisons la topographie AFM au laboratoire (Figures 13).

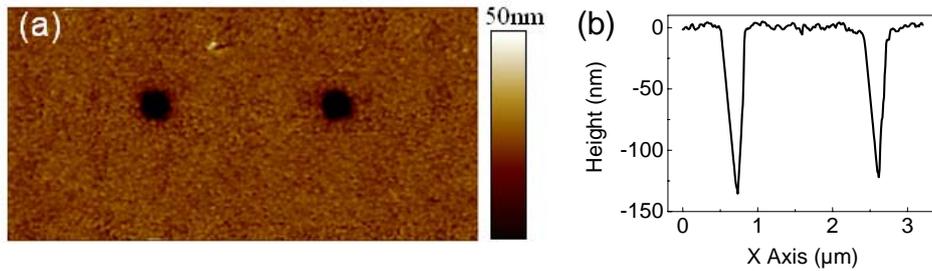


FIGURE 13 – (a) Topography STM d'une paire de nanotrous de diamètre $D=250$ nm et distants de $d = 2 \mu\text{m}$. (b) Coupe transversale le long des nanotrous.

Etude préliminaire de la diffusion des plasmons propagatifs par des nanotrous de diamètre 250 nm, 500 nm et 1 μm

La diffusion radiative des trous provient essentiellement du plan plasmonique d'incidence. Les directions d'émission sont dispersées dans le cas de nanotrous de diamètre 250 nm. Elles sont très directives pour les nanotrous de diamètre 1 μm ; contenues dans le plan plasmonique d'incidence, elles semblent "prolonger" le faisceau plasmonique incident.

Diffusion radiative des plasmons propagatifs par deux nanotrous de diamètre 250 nm et distants de 2 μm

Des franges d'interférence sont observées qui recouvrent tout ou une partie du plan de Fourier suivant la position de la pointe. L'interfrange angulaire est proportionnel à la longueur d'onde moyenne des plasmons et inversement proportionnel à la distance des nanotrous. La coupe transversale de la figure d'interférence observée dans le plan de Fourier est simulée en considérant que chacun des nanotrous se comporte comme un dipôle oscillant parallèle à la direction pointe-nanotrou. On tient compte comme indiqué précédemment du diamètre des trous et du phénomène de battement lié à la largeur spectrale du faisceau de plasmons. La visibilité des franges est mesurée, ainsi que le rapport d'intensité du champ électromagnétique au niveau de chaque trou. On en déduit le degré de cohérence de l'onde plasmonique au niveau des deux trous. Il est de 0.95 pour une différence de chemin optique de 2 μm (pointe sur l'axe des nanotrous distants de 2 μm). Il n'a pas été possible d'étudier avec les nanotrous de 250 nm des différences de chemin optique plus élevées : le signal était trop faible.

Diffusion radiative des plasmons propagatifs par deux nanotrous de diamètre 1 μm et distants de 2 μm , 4 μm et 6 μm

La figure 14 montre les images dans le plan réel et dans le plan de Fourier de la lumière diffusée par une paire de nanotrous de diamètre 1 μm séparés par des distances de 2 μm , 4 μm et 6 μm . La pointe est positionnée le long de l'axe des nanotrous. Des franges d'interférences sont observées dans le plan de Fourier quand le recouvrement spatial des faisceaux diffusés a lieu.

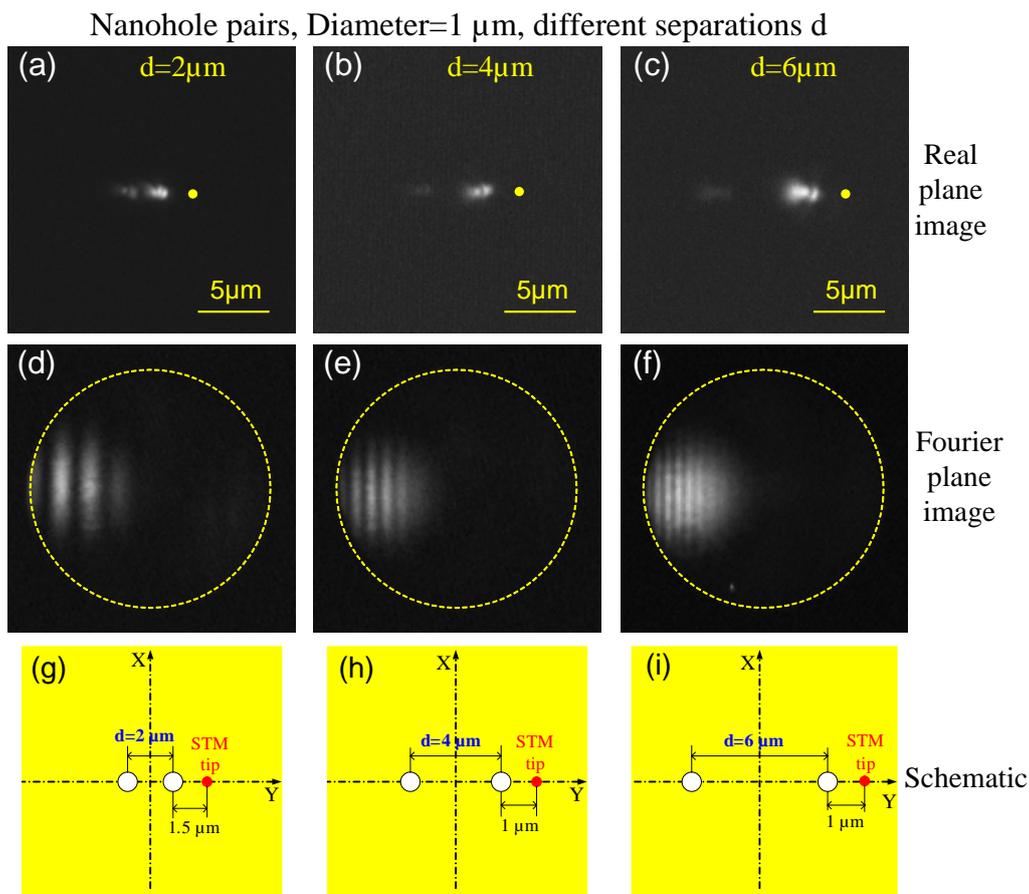


FIGURE 14 – Images dans l’espace réel (a-c) et dans l’espace de Fourier (d-e) de la diffusion radiative des PSP propagatifs par des paires de nanotrous de diamètre 1 μm et pour trois distances de séparation d (2 μm , 4 μm , 6 μm). La pointe STM est le long de l’axe des nanotrous comme indiqué par le spot jaune en (a-c). (g-i) are the corresponding schematics.

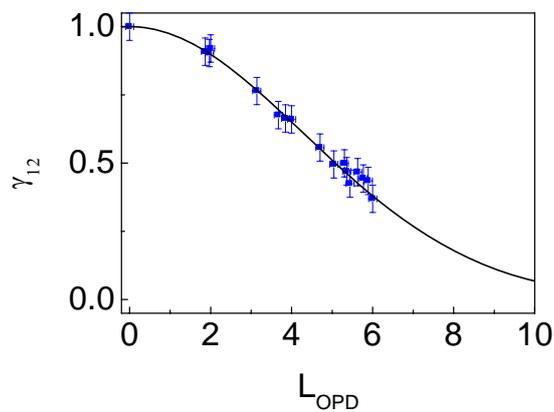


FIGURE 15 – Degré de cohérence $|\gamma_{12}(L_{PPD})|$ en fonction de la différence de chemin plasmonique L_{PPD} . Les points bleus sont les degrés de cohérence mesurés. La courbe en trait plein est un fit gaussien.

Degré de cohérence de l'onde plasmonique à partir des figures d'interférence μm

Le degré de cohérence de l'onde plasmonique au niveau des trous a été mesuré pour quinze différences de chemin optique compris entre 0 et $6 \mu\text{m}$ (Figure 15). Nous en déduisons que la longueur de cohérence des plasmons est de $4.7 \pm 0.5 \mu\text{m}$.

Largeur homogène de la distribution spectrale des plasmons propagatifs

Si l'on suppose que l'élargissement spectral des plasmons est homogène, on déduit de leur largeur spectrale (Figure 16) une longueur de cohérence des plasmons de $3.7 \pm 1.2 \mu\text{m}$. Cette valeur est en accord avec la longueur de cohérence déduite des franges d'interférence. Nous en concluons que les plasmons propagatifs créés sur film d'or par effet tunnel inélastique entre la pointe STM et le film ont une largeur homogène.

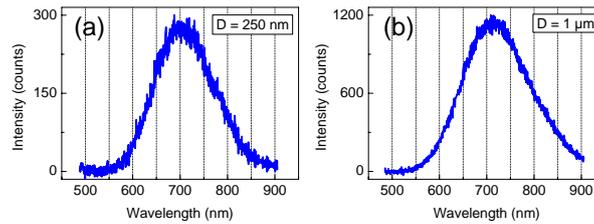


FIGURE 16 – Spectre radiatif des plasmons de surface excités par une pointe STM et diffusés par (a) une paire de nanotrous de diamètre 250 nm et séparés par $2 \mu\text{m}$, et (b) de diamètre 1 et séparés par $2 \mu\text{m}$. Les conditions de l'effet tunnel sont 2.8 V et 6 nA.

Conclusion

Ce résultat est très important car il démontre une méthode pour produire des plasmons de surface à large bande spectrale homogène qui pourraient être utilisés pour la fabrication de nanolasers "blancs" ou de lasers plasmoniques. Notre résultat a aussi une importance cruciale pour la compréhension du mécanisme de l'effet tunnel inélastique sur film plasmonique. Jusqu'à présent, il n'en existe pas de théorie complète. D'un côté, la règle d'or de Fermi dans l'approximation dipolaire a été utilisée pour tenir compte (i) du couplage entre les électrons tunnel et le champ électromagnétique de la cavité pointe-film métallique et (ii) de la densité électronique des états de la pointe et du film. D'autre part, les fluctuations temporelles du courant tunnel sont supposées jouer un rôle dans l'élargissement spectral de la distribution d'énergie des plasmons. Notre observation d'un élargissement homogène des plasmons de surface excités par effet tunnel inélastique avec le STM est certainement une clef pour valider les théories futures de l'effet plasmonique tunnel inélastique sur film d'or.

Chapter 6 : Diffusion des plasmons propagatifs excités par STM par des nanoparticules d'or

Les plasmons de surface polaritons (SPP) qui se propagent dans des nanostructures métalliques offrent de nouvelles perspectives pour l'intégration de l'optique à l'échelle nanométrique puisqu'ils offrent la possibilité de confiner et de guider le champ électromagnétique à l'échelle sublongueur d'onde. L'un des objectifs principaux de la nanoplasmonique est de contrôler et de manipuler les propriétés des plasmons de surface (direction de propagation et longueur de propagation). Ce contrôle est essentiel dans la perspective de nouveaux dispositifs nanophotoniques. Dans le contrôle et la manipulation des propriétés de propagation des plasmons de surface, la diffusion joue un rôle prépondérant. Il est donc indispensable de savoir comment les plasmons de surface polaritons propagatifs sont diffusés par des éléments optiques typiques tels les nanoparticules.

Des expériences d'optique utilisant des lasers ont montré que nanoparticules sur surfaces métalliques peuvent constituer des composants micro-optiques pour SPP, tels que miroirs, diviseurs de faisceau et interféromètres. En outre, les arrangements périodiques de nanoparticules métalliques montrent des propriétés de bande interdite pour la propagation de SPP. En raison de ces applica-

tions intéressantes, il est important de comprendre comment les plasmons de surface propagatifs excités par STM sont diffusés par des nanoparticules d'or.

Dans le chapitre 6, nous utilisons comme diffuseur de plasmons propagatifs des nanoparticules d'or déposées sur un film d'or de 50 nm. Nous observons à la fois la diffusion élastique (dans le plan de l'interface air/or) et la diffusion radiative (hors du plan) des plasmons propagatifs. Les nanoparticules d'or ont été synthétisées par W. Labidi et H. Remita à l'ICMO (Université d'Orsay). Elles sont déposées sur film d'or puis observées par champ sombre et microscopie de force atomique (AFM) (Figure 17).

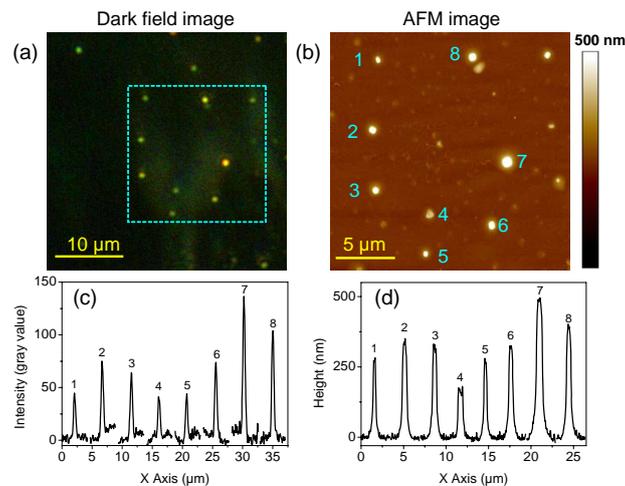


FIGURE 17 – (a) Image en champ sombre de nanoparticules (NP) d'or déposées sur un film d'or de 50 nm. Le carré en pointillé indique la région d'intérêt. Il y a plusieurs NP. Leurs couleurs différentes correspondent à des tailles différentes. (b) Topographie AFM en mode tapping des NP d'or numérotées de 1 à 8. On y observe aussi des tailles différentes. (c) et (d) sont respectivement les coupes transversales de l'image en champ sombre et de la topographie AFM : la correspondance entre intensité d'émission et taille de la NP y est très nette.

Un exemple de résultat est présenté Figure 18. Dans l'image du plan réel (partie gauche de la Figure 18), nous observons l'émission localisée sous la pointe, la radiation de la nanoparticule et la diffusion élastique des plasmons propagatifs par la nanoparticule d'or. Une frange brillante de forme hyperbolique apparaît, caractérisée par un angle θ . L'angle de diffusion θ dépend de la distance pointe-nanoparticule (Figure 18 et 19a). Ce phénomène s'explique par l'interférence de l'onde circulaire plasmonique issue de la pointe et de l'onde plasmonique circulaire diffusée par la nanoparticule. Le résultat du calcul de cet interférence est présenté Figure 19 a. L'accord avec les mesures est excellent. Regardons maintenant l'image du plan de Fourier (partie droite de la Figure 18). On observe des franges linéaires dans la région de la lumière interdite. L'interfrange est inversement proportionnel à la distance pointe-nanoparticule, le facteur de proportionnalité étant la longueur d'onde moyenne des plasmons (Figure 19b). Ceci indique que la lumière diffusée la lumière rayonnée sous la pointe à grand angle et la lumière diffusée par la nanoparticule interfèrent. Les plasmons localisés et les plasmons propagatifs excités par STM sont cohérents entre eux.

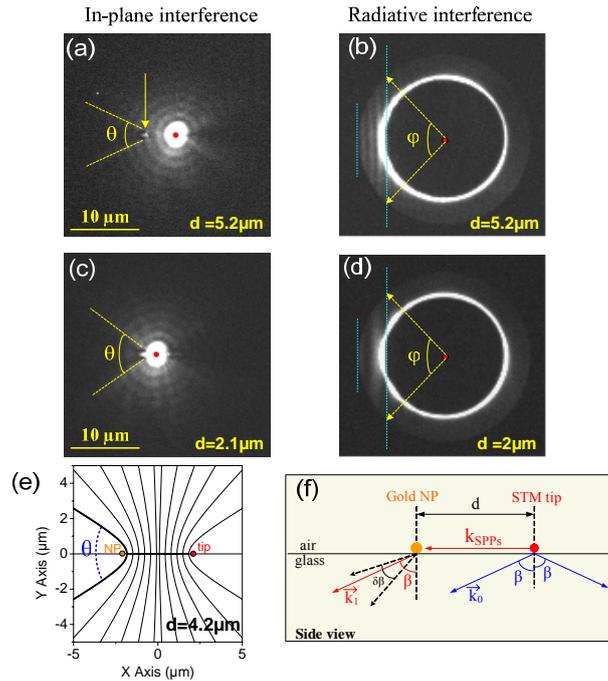


FIGURE 18 – Interférences dans le plan image (a) et (c) et dans le plan de Fourier (b) et (d) lors de la diffusion élastique (a) et (c) et radiative (b) et (d) des ondes plasmoniques radiales issues de la pointe STM sur une nanoparticule (NP) d’or. La distance pointe-NP est de $5.2 \mu\text{m}$ en (a) et (b) et de $2.1 \mu\text{m}$ en (c) et (d). Le point rouge indique la position de la pointe, la flèche jaune celle de la NP. Les franges d’interférences de la diffusion élastique sont données en (c). Le schéma des interférences radiatives est donné en (f).

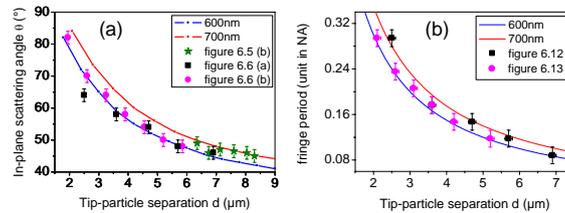


FIGURE 19 – (a) Angles de diffusion élastique des plasmons mesurés (points) et calculés (courbes) en fonction de la distance pointe-nanoparticule d’or. (b) Interfranges mesurés dans le plan de Fourier (points) et calculés (courbes) pour une diffusion radiative des plasmons en fonction de la distance pointe-nanoparticule d’or.

En conclusion, les plasmons localisés et les plasmons propagatifs excités sur un film d’or par un effet tunnel inélastique avec la pointe STM sont différentes composantes du même plasmon. Ce résultat est important dans le contexte d’une meilleure compréhension du processus d’excitation des plasmons.

Chapter 7 : Conclusions et perspectives

Le chapitre 7 donne les conclusions et les perspectives d'avenir.

Nous avons montré qu'un effet tunnel inélastique dans la jonction pointe STM sur film d'or excite à la fois des plasmons localisés sous la pointe et des plasmons propagatifs sur l'interface air/or. Ces deux modes de plasmons sont large bande. Dans nos conditions d'utilisation ($V=2.8$ V), les plasmons sont couplés à des photons du visible (longueur d'onde moyenne 700 nm pour les propagatifs). En modifiant la dimension de l'apex de la pointe et son matériau, on peut exciter préférentiellement des plasmons localisés ou des plasmons propagatifs. Ceci a d'importantes applications pour la conception de nano-source de plasmons fonctionnant électriquement, nano-sources qui doivent exciter (i) des modes plasmons localisés en nanocavité pour une exhaltation du champ électromagnétique ou (ii) des modes plasmons propagatifs pour le transfert d'information. Les plasmons polaritons de surface excités par STM fournissent le pont entre la nano-électronique et la nano-optique.

Nous avons exploré les propriétés uniques des plasmons de surface excités par STM.

Nous avons pu accéder aux propriétés de cohérence spatiale des plasmons polaritons de surface (SPP) propagatifs excités par STM. Des expériences d'interférence photonique utilisant une série de paires de nanotrous percés dans un film d'or de 200 nm ont été réalisées. Trois distances de nanotrous ont été choisies et le déplacement de la pointe STM a permis la modification des différences de chemins plasmoniques. C'est l'analogie plasmonique de l'expérience des fentes Young. Nous avons montré que la longueur de cohérence des SPP propagatifs est de 4.7 ± 0.5 μm . Cette longueur de cohérence est voisine de la valeur déduite du spectre en longueur d'onde des plasmons. L'élargissement spectral des SPP propagatifs excités par STM est donc homogène. Ce résultat démontre la possibilité de produire des SPP ayant une large bande spectrale homogène qui pourraient être utilisés dans la fabrication de nano-lasers ou de lasers plasmoniques. Ce résultat est aussi important pour la compréhension du mécanisme de l'effet tunnel inélastique générant des SPP. Il montre que l'électron qui franchit la barrière de potentiel perd une distribution d'énergie à large bande.

Nous avons aussi étudié la diffusion élastique et radiative de PSP propagatifs excités par STM sur des nanoparticules (NP) d'or déposées sur un film de 50 nm. Des franges d'interférence sont observées dans la région de lumière interdite du plan de Fourier. Elles s'étendent jusqu'à l'ouverture numérique maximum de l'objectif à huile. L'interfrange est inversement proportionnel à la distance pointe - NP, le facteur de proportionnalité étant la longueur d'onde moyenne des plasmons. Il y a donc interférence entre la fuite radiative associée au plasmon localisé sous la pointe et la diffusion radiative sur la NP du plasmon propagatif associé. Ceci indique que le plasmon localisé et le plasmon propagatif sont cohérents. Cela veut dire aussi que le plasmon localisé et le plasmon propagatif sont différentes composantes du plasmon unique que crée un électron tunnel en franchissant inélastiquement la barrière de potentiel pointe-film d'or.

Cette thèse s'est déroulée dans le groupe "Nanosciences Moléculaires" de l'institut des Sciences Moléculaires (ISMO) de l'Université Paris XI. Elle a été coencadrée par Geneviève Comtet, Elizabeth Boer-Duchemin et Gérald Dujardin.