



HAL
open science

Plasmon de surface de particules métalliques toroïdales

Alexandre Mary

► **To cite this version:**

Alexandre Mary. Plasmon de surface de particules métalliques toroïdales. Physique mathématique [math-ph]. Université de Bourgogne, 2006. Français. NNT: . tel-00125844

HAL Id: tel-00125844

<https://theses.hal.science/tel-00125844v1>

Submitted on 22 Jan 2007

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

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

UNIVERSITÉ DE BOURGOGNE

FACULTÉ DES SCIENCES

Laboratoire de Physique

Optique Submicronique

PLASMON DE SURFACE DE PARTICULES MÉTALLIQUES TOROÏDALES

Thèse présentés devant l'Université de Bourgogne pour obtenir
le grade de Docteur (Mention Physique)

par

Alexandre Mary

Thèse soutenue le 30 novembre 2006 devant la commission d'examen composé de :

MM.	GIRARD	C.	Directeur de Recherche CNRS, Toulouse	Rapporteur
Mme.	SENTENAC	A.	Chargé de Recherche CNRS, Marseille	Rapporteur
MM.	BORENSZTEIN	Y.	Directeur de Recherche CNRS, Paris	Examineur
MM.	GARCIA DE ABAJO	J.	Professeur, Instituto de Optica, Madrid	Examineur
MM.	DEREUX	A.	Professeur, Univ. Bourgogne, Dijon	Directeur de thèse

Remerciements

Le doctorant est souvent comparé au marin solitaire, luttant contre vents et marées pour réussir sa course ou simplement pour atteindre son but. Dans son passionnant périple, cette explorateur n'est jamais seul mais est toujours guidé par les phares et constamment en communication radio avec son entourage. C'est pourquoi, je tiens tout d'abord à exprimer mes plus vifs remerciements à Alain Dereux qui m'a accueilli au sein de l'Equipe d'Optique Submicronique et m'a confié le sujet de cette thèse. Je le remercie de m'avoir communiqué sa passion pour la recherche fondamentale. Son expérience et son sens de la physique m'ont guidé au travers les vagues durant toutes ces années.

J'exprime mes profonds remerciements à Thomas L. Ferrell pour ces notes et réflexions sur les modes de plasmons du tore. Elles ont joué pour moi le rôle de port d'attache et ont grandement facilité les préparatifs de ce voyage.

Je suis très honoré que Madame Anne Sentenac et Monsieur Christian Girard aient accepté le rôle de rapporteur et je les remercie tout particulièrement.

Je suis également reconnaissant aux membres du jury, Messieurs Yves Borensztein et Javier Garcia de Abajo d'avoir accepté de critiquer ce travail.

Je dois beaucoup aux conditions scientifiques dans lesquelles j'ai été accueilli par l'équipe d'Optique Submicronique, ce qui m'a permis de bénéficier de l'animation scientifique et de discussions stimulantes. Je suis redevable à l'ensemble des membres de l'unité. J'aimerais citer particulièrement Gérard Colas des Francs, pour l'intérêt qu'il a manifesté à mon travail ainsi que ses critiques constructives. Il m'a aussi permis de bénéficier de la dynamique du programme de recherche ASPRINT. Je souhaite exprimer ma gratitude envers Elly Lacroute pour sa disponibilité et sa bonne humeur. Pour finir, je remercie l'équipe de Joachim Krenn pour les échantillons qui ont préparé les échantillons dans le

cadre du projet européen Plasmo-Nano-device.

Je dois beaucoup à mes parents qui m'ont encouragé tout au long de mes études. Je les remercie pour leur compréhension. Enfant, je lisais les "Science et Vie" de mon père. Je rêvais alors de ces petites découvertes qui font vibrer les chercheurs. J'étais alors loin d'imaginer que, un jour, j'apporterai ma modeste contribution à la Recherche. Je remercie également Sylvie qui a été ma compagne de voyage, subissant avec moi les moments d'avancée rapide et d'enthousiasme qui alternent aux moments de détour et de détresse. Par son amour, elle a su m'encourager et m'aider à relever la tête afin d'affronter les pires tempêtes.

Il m'est très difficile de privilégier une personne par rapport à une autre tant les contributions ont été variées. Je suis donc reconnaissant à tout ceux qui m'ont soutenu que ce soit sur le plan scientifique, matériel, moral ou affectif, à un stade avancé de la thèse ou pas. Leurs aides m'ont permis d'arriver au bout de ce fantastique voyage.

Table des matières

Glossaire	5
Introduction	9
1 Interaction lumière-matière	15
1.1 Systèmes d'unités et équations de Maxwell	16
1.2 Dipôle magnétique aux fréquences optiques	19
1.2.1 Perméabilité magnétique aux fréquences optiques	19
1.2.2 Quête de l'indice de réfraction négatif	22
1.2.3 Détection de la composante magnétique du champ optique	26
1.2.4 Relation d'incertitude d'Heisenberg	27
1.3 Diffusion de la lumière par des petites particules	29
1.3.1 Régimes retardés et non retardés	32
1.3.2 Extinction, diffusion et absorption	34
1.3.3 Développement multipolaire	35
1.3.4 Modes propres retardés d'une sphère diélectrique	36
1.3.5 Modes de Mie	38
1.3.6 Nanosphère	41
1.3.7 Approximation électrostatique	42
1.3.8 Nano-particules ellipsoïdales	45
1.3.9 Géométrie cylindrique	47
1.3.10 Géométrie torique	49
2 Equation de Laplace en coordonnées toroïdales	53
2.1 Coordonnées toroïdales	53
2.1.1 Coordonnées bipolaires	53
2.1.2 Construction des coordonnées toroïdales	55
2.1.3 Facteurs d'échelle	60

2.1.4	Vecteurs unitaires	60
2.1.5	Vecteur position	61
2.1.6	Gradient et laplacien en coordonnées toroïdales	61
2.2	Solutions mathématiques de l'équation de Laplace en coordonnées toroïdales	62
2.2.1	Séparation de variables	62
2.2.2	Solutions générales des équations différentielles ordinaires	64
2.3	Fonctions de Legendre d'indices demi-entiers	65
2.3.1	Relations de récurrence et évaluation numérique	66
2.3.2	Orthogonalité	70
2.3.3	Dérivées	70
2.3.4	Autres formules analytiques	71
2.3.5	Degrés négatifs	71
2.3.6	Comportements asymptotiques	71
2.4	Coordonnées cartésiennes et fonctions toroïdales	72
3	Plasmons de surface du tore	77
3.1	Potentiels intérieur et extérieur	77
3.2	Conditions de raccord	79
3.3	Système d'équations et son découplage	80
3.3.1	Modes propres pairs	81
3.3.2	Modes propres impairs	83
3.4	Relation de dispersion des modes propres	85
3.5	Structure des modes propres	86
3.5.1	Potentiels	86
3.5.2	Champs électriques associés aux modes propres	87
4	Nanotore métallique dans un champ électrique uniforme	93
4.1	Tore métallique dans un champ uniforme axial	94
4.1.1	Champ appliqué et conditions de raccord	94
4.1.2	Approximation des tores fins	96
4.2	Tore métallique dans un champ uniforme planaire	102
4.3	Distribution des champs électriques	108
4.4	Conclusion	109

5 Plasmons de surface de nanotores métalliques	111
5.1 Fonction diélectrique des métaux nobles	112
5.2 Évaluation des relations de dispersion	115
5.2.1 Tore en Au dans le vide	115
5.2.2 Tore en Au intégré dans du verre	117
5.3 Distributions spatiales des modes propres	118
5.4 Calcul des moments dipolaires des plasmons du tore	121
6 Spectres d’extinction des nanotores	129
6.1 Spectres d’extinction analytiques et numériques	129
6.1.1 Champ axial	130
6.1.2 Champ planaire	134
6.1.3 Sensibilité des fréquences de résonance au milieu extérieur	137
6.2 Données expérimentales	139
6.2.1 Fabrication et mesures d’extinction	139
6.2.2 Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux	141
6.3 Conclusions	146
Conclusions et perspectives	147
Annexes	169
A Table de conversion CGS-SI	169
B Distributions spatiales des modes propres d’ordre 1	171
C Diffusion et extinction par la méthode du tenseur de Green	179
D Sections efficaces de diffusion et d’extinction de nanotores métalliques	185
D.1 Tore métallique dans un champ uniforme axial	185
D.2 Tore métallique dans un champ uniforme planaire	186

Glossaire

a	rayon d'un cercle ou foyer du tore
\mathbf{B}	champ d'induction magnétique
$\bar{\mathbf{b}}$	champ d'induction magnétique microscopique
c	vitesse de la lumière dans le vide ($2.997925 \cdot 10^8$ m/s)
C_a	section efficace d'absorption
C_{ext}	section efficace d'extinction
C_{sca}	section efficace de diffusion
\mathbf{D}	déplacement électrique
\mathbf{E}	champ électrique
\mathbf{E}_0	champ électrique incident
\mathbf{E}_s	champ électrique diffusé
$\bar{\mathbf{e}}$	champ électrique microscopique
$\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_\theta, \mathbf{e}_\varphi$	vecteurs unitaires du système de coordonnées sphériques
$\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z$	vecteurs unitaires du système de coordonnées cartésiens
$\mathbf{e}_{q_1}, \mathbf{e}_{q_2}, \mathbf{e}_{q_3}$	vecteurs unitaires du système de coordonnées toroïdales
G_0	tenseur de Green d'un domaine d'un milieu homogène
G	tenseur de Green d'un système perturbé
\mathbf{H}	champ magnétique
\mathbf{H}_s	champ magnétique diffusé
h	constante de Planck
\hbar	$h/(2\pi)$
$h_n(kr)$	fonctions de Hankel de première espèce
$h_{q_1}, h_{q_2}, h_{q_3}$	facteurs d'échelles
i	racine carré de -1
$I_m(x)$	fonctions de Bessel de 1ère espèce et d'argument x
\mathbf{J}_{ext}	courant extérieur
\mathbf{J}_{ind}	courant induit
$j_n(kr)$	fonctions de Bessel de première espèce

\mathbf{k}_0	vecteur d'onde incident
\mathbf{k}_s	vecteur d'onde diffusé
k_B	constante de Boltzman
k_j	Coordonnée cartésienne d'un vecteur d'onde ($j = x, y, z$)
$k_{ }$	$ \mathbf{k}_{ } $
$K_m(x)$	fonctions de Bessel de 2nd espèce et d'argument x
\mathbf{M}_l	fonction propre transverse quelconque
$\mathbf{M}_{\zeta nm}$	fonction propre transverse en coordonnées sphériques
\mathbf{M}	vecteur de magnétisation
\mathbf{m}	moment dipolaire magnétique
m	nombre entier
\mathbf{N}_l	fonction propre transverse quelconque
$\mathbf{N}_{\zeta nm}$	fonction propre transverse en coordonnées sphériques
\mathbf{n}	vecteur unité
n	nombre entier ou indice de réfraction
$P_\nu^m(\vartheta)$	fonctions de Legendre d'indices entiers
$P_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1)$	fonctions toroïdales P
\mathbf{P}	vecteur de polarisation
\mathbf{p}	moment dipolaire électrique
$Q_\nu^m(\vartheta)$	fonctions de Legendre d'indices entiers
$Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1)$	fonctions toroïdales Q
q_1, q_2, q_3	Coordonnées toroïdales d'un vecteur position : $\mathbf{r} = (q_1, q_2, q_3)$
q_1^0	paramètre de définition de la surface du tore
$\mathbf{r}, \mathbf{r}', \mathbf{r}''$	vecteurs positions
r, r', r''	normes de vecteurs positions
r, θ, φ	Coordonnées toroïdales d'un vecteur position : $\mathbf{r} = (q_1, q_2, q_3)$
\mathbf{S}	Vecteur de Poynting
S_{sca}	composante radiale de la partie réelle du vecteur de Poynting d'une onde diffusée
S_{ext}	composante radiale de la partie réelle du vecteur de Poynting d'extinction (onde absorbée et diffusée)
\mathbf{T}	tenseur de diffusion
t	temps
\mathbf{V}	tenseur de perturbation
x, y, z	Coordonnées cartésiennes d'un vecteur position : $\mathbf{r} = (x, y, z)$

Φ	potentiel électrostatique
$\delta_{m,n}$	delta de Kronecker delta = 1 si $m = n$; = 0 si $m \neq n$
\Im	partie imaginaire
\Re	partie réelle
\mathcal{V}	volume
ω	pulsation
ω_p	fréquence de plasma
ω_{sp}	fréquence de plasmon d'une sphère
ε	fonction diélectrique
ε_0	permissivité diélectrique du vide ($8.854188 \cdot 10^{-12}$ F/m)
ε_{ref}	permissivité diélectrique du milieu de référence
μ_0	perméabilité du vide ($4\pi \cdot 10^{-7}$ H.m ⁻¹)
μ	perméabilité magnétique
λ	longueur d'onde dans le vide
π	3.14159...
Ω_n	angle solide dans la direction \mathbf{n}
ρ_{ext}	densité de charge électrique extérieure
∞	scalaire infini
I	tenseur unité
\cdot	produit scalaire
\times	produit tensoriel
∂	symbole de la dérivée partielle
∇	gradient
$\nabla \cdot$	divergence
$\nabla \times$	rotationnel
$\vec{\nabla}^2$	laplacien vectoriel

Introduction

Les nanosciences regroupent l'ensemble des recherches sur des objets et structures de tailles comprises entre 1 et 100 nanomètres (nm). Un nanomètre est le milliardième de mètre, ce qui correspond approximativement à la longueur formée par quatre atomes de silicium alignés. Par comparaison, les protéines, les plus grandes molécules intervenant dans les réactions biochimiques des cellules, mesurent entre 2 et 20 nm. Au début des années 1990, un transistor avait une taille légèrement inférieure au micromètre. Aujourd'hui, des microprocesseurs dont les transistors ont des tailles inférieures à 100 nm, sont produits de façon industrielle et embarqués dans les ordinateurs personnels. Les extrapolations montrent qu'en 2010 ces dimensions seront de l'ordre de la dizaine de nanomètre.

Au niveau mondial, en plus d'être une véritable révolution conceptuelle, les nanosciences et les nanotechnologies sont un secteur stratégique essentiel, en croissance rapide, avec un énorme potentiel de développement économique [1] [2]. Ce secteur en plein essor fait l'objet de programmes importants, notamment dans le cadre du 6ème programme-cadre de recherche (PCRD) de l'Union Européenne, et bénéficie de soutiens financiers considérables dans de nombreux pays. En 2005, l'effort mondial (académique et industriel) pour les nanotechnologies a été estimé à 9 milliards de dollars par la National Nanotechnology Initiative (NNI) américaine, selon une répartition à peu près uniforme entre les pays d'Asie, d'Europe et d'Amérique du Nord. Entre 1998 et 2003, les investissements publics ont été multipliés par six en Europe, par huit aux Etats-Unis et au Japon.

À l'évidence, les nanotechnologies devraient, ces prochaines années, avoir des répercussions économiques majeures. Toutefois, seules quelques réalisations existent à ce jour et beaucoup restent encore aujourd'hui du domaine du rêve. La manipulation de la matière à l'échelle du nanomètre ouvre la voie à de futures innovations qui sont à la base du très large intérêt que les nanosciences suscitent actuellement.

Toutes les techniques d'observation et d'élaboration de nanostructures recouvrent de nombreux domaines de la physique, de la chimie et de la biologie. La complémentarité de

ces disciplines ouvre la voie à de nouvelles technologies qui préfigurent l'aube de révolution dans différents domaines, tel que l'informatique, la médecine, l'industrie pharmaceutique et chimique, l'environnement, la biotechnologie, ainsi que les technologies de la communication et de l'information.

Cette thèse s'inscrit plus spécifiquement dans le cadre de la plasmonique. Dans ce domaine de recherche de l'optique des métaux, nous nous intéresserons plus particulièrement à l'étude des phénomènes d'interaction entre la lumière et des particules métalliques dont la taille est inférieure à la lumière incidente. Dans le spectre d'absorption de ces objets apparaît une résonance appelée résonance de plasmon de surface. Pour les métaux nobles tel que l'argent ou l'or, elle se situe dans la gamme visible du spectre de l'électromagnétique. Ses caractéristiques - position, largeur spectrales et sensibilité à la polarisation de la lumière- dépendent à la fois des propriétés intrinsèques des nano-objets et de leur environnement local.

Les plasmons de surface sont des modes électromagnétiques liés à une interface métal-diélectrique. Ce sont les modes propres des oscillations collectives des électrons libres dans les métaux. Comme les électrons possèdent une charge, ces oscillations sont associées à un champ électromagnétique. Les conditions de raccord des différents champs amènent à des conditions différentes pour l'excitation des plasmons suivant la nature chimique du métal, de la forme de la particule ou de la surface, et également de la nature de l'environnement diélectrique. Découvert récemment, cet effet explique pourquoi des particules métalliques ajoutées à du verre génèrent des couleurs intenses. Sans connaître le principe de cet effet, l'Homme exploita ce phénomène dès le Moyen-Âge pour créer des vitraux. Jouant sur les concentrations des solutions d'or, d'argent ou de cuivre, le maître verrier parvenait à créer des colorations intenses.

De nos jours, des études s'interrogent sur les propriétés particulières des plasmons et leur applications technologiques. Citons en premier les propriétés de propagation et de guidage des plasmons [3, 4] qui suscitent l'émulation des chercheurs afin de réduire en taille les dispositifs optiques classiques [5]. L'onde de plasmon-polariton peut se propager sur quelques micromètres (μm) le long d'un fil métallique de section sub-longueur d'onde. Le guidage peut également être assuré par une chaîne de nanoparticules d'or par couplage de plasmons localisés [6] ou bien par des rainures creusées dans un film mince métallique [7].

D'autre part, le concept d'éléments de base de circuit aux fréquences optiques a été

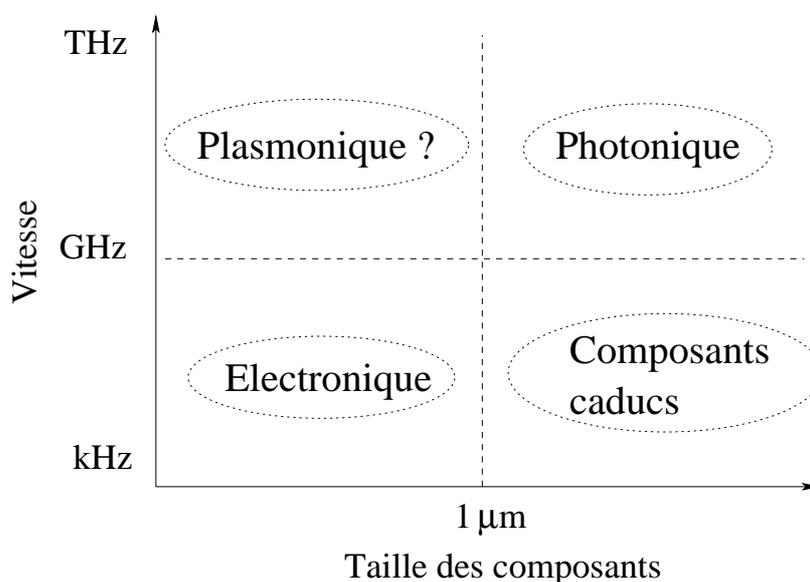


FIG. 0.1 – *Vitesse et taille des composants : la plasmonique face à la photonique et à l'électronique.*

introduit récemment par N. Engheta et al. [8]. Les auteurs proposent une analogie entre la réponse de nanoparticules métalliques et non métalliques à l'application d'une onde incidente, avec celle des trois composants passifs linéaires de base en électrotechnique. Les effets de résonance des nano-particules sont comparés aux effets résistif, capacitif et auto inductif d'un circuit électrique [9]. Ces concepts de nano-capacité, de nano-résistance, et de nano-inductance en optique formeraient la base pour l'élaboration de circuits plus complexes fonctionnant aux fréquences optiques [10].

Enfin, le contrôle du champ proche optique par des plasmons de surface de nanoparticules ouvrent de nouvelles perspectives dans le domaine de l'adressage optique de molécules [11]. L'enjeu principal est de faire réaliser des fonctions logiques, non plus à partir de matériaux semi-conducteurs, mais par des molécules.

La plasmonique, par les propriétés de propagation, d'interaction et de contrôle des plasmons de surface, croise les espoirs concernant le développement de composants ultra-rapides [12] (Fig. 0.1) pour la réalisation d'ordinateurs tout optique.

L'observation dans l'espace direct des processus optiques à l'échelle submicronique, y compris les plasmons de surface, a été possible par l'émergence des microscopes en champ proche. Contrairement aux microscopes optiques classiques, leurs principes de fonctionnement et de détection permettent de s'affranchir de la limite de la résolution imposée par le

critère de Rayleigh. Pour détecter les informations en champ proche, plusieurs configurations expérimentales sont possibles. On distingue deux types génériques d'appareillages : les SNOM (Scanning Near-field Optical Microscope) et les PSTM (Photon Scanning Tunneling Microscope). Ces microscopes sont tout deux basés sur la combinaison d'un type de sonde (avec ou sans ouverture) avec un mode d'éclairage (en réflexion ou en transmission). Dans le cas des microscopes SNOM, une sonde locale est amenée au voisinage d'une surface afin de l'illuminer. Le signal diffusé par cette surface est recueilli en transmission ou en réflexion. Les PSTM sont basés sur l'éclairage en réflexion totale interne et mettent en jeu l'effet tunnel optique en frustrant l'onde évanescente produite. L'élément clé d'un microscope optique en champ proche est la sonde. En effet, la composition de la sonde locale influence la nature du signal détecté. Lorsque la sonde d'un PSTM est purement diélectrique, les images expérimentales présentent les mêmes contrastes que les cartes théoriques de la distribution spatiales de l'intensité du champ électrique, calculées en l'absence de pointe [13]. Si la pointe diélectrique est métallisée, le contraste des images peut changer et le signal enregistré s'apparente alors à la distribution spatiale de l'intensité du champ magnétique [14, 15]. Cette observation suggère que la pointe se comporte comme un dipôle magnétique. En 2001, U. Schröter et A. Dereux utilisèrent le modèle des modes propres de plasmons de surface de cylindres diélectrique métallisés pour démontrer qu'un mode plasmon lié à la couche métallique crée un moment dipolaire magnétique supérieur au moment électrique [16]. Les auteurs suggérèrent alors d'étudier les modes de plasmons liés à des tores afin de vérifier si cette propriété se retrouve sur d'autres types d'échantillons présentant une symétrie circulaire. Une telle expérience nécessite une étude théorique préalable des modes de plasmons dans le système de coordonnées toriques.

Depuis l'article de Pendry en 2000 [17], de nombreuses études ont envisagé la possibilité de produire un matériau possédant une fonction diélectrique ε et une perméabilité magnétique μ toutes deux négatives. Pour un tel matériau, la théorie prévoit un changement de signe de l'angle de réfraction dans la loi de Snell-Descartes, permettant la création d'une "super lentille" optique. Aux fréquences optiques, la réalisation de ces matériaux à indice de réfraction négatif (NIM: Negative Index Material) implique que des nanostructures métalliques capables de soutenir un moment dipolaire magnétique soient réalisables. De nouveau, l'étude de la géométrie torique apparaît pertinente. La microscopie optique de champ proche et les progrès récents dans le domaine des NIM motivent donc l'étude des plasmons de surface des tores entreprise dans ce travail.

Parce que les propriétés optiques des particules métalliques de taille nanométrique dépendent drastiquement des formes, des dimensions et du milieu diélectrique environnant [18], une étude théorique est nécessaire avant toute expérience, afin de déterminer les paramètres structuraux pertinents. Pour des particules très petites, qui autorisent l'approximation non retardée, ces investigations théoriques reposent généralement sur la résolution de l'équation de Laplace dans le système de coordonnées correspondant à la géométrie de la particule. Notre étude est donc construite sur la résolution des équations de l'électrostatique dans le système de coordonnées toroïdales.

Le chapitre 1 est articulé autour de deux axes. Le premier est consacré à la question de la perméabilité magnétique aux fréquences optiques. Aux fréquences optiques, les dipôles magnétiques ne sont pas attendus naturellement. Cependant, nous verrons que la possibilité d'obtenir des dipôles magnétiques dans le visible à l'aide de structures artificielles ouvre la voie à la réalisation de nouveaux matériaux et pose certaines questions plus fondamentales dans le domaine de l'électrodynamique quantique. Le second axe de ce chapitre rappellera certaines notions et phénomènes de l'interaction de la lumière avec des petites particules métalliques.

Le chapitre 2 présentera en détails le système de coordonnées toroïdales avant de se tourner plus particulièrement vers les difficultés de résolution de l'équation de Laplace dans ce système de coordonnées. Nous décrirons alors les fonctions spéciales qui apparaissent lors de cette résolution. Nous verrons que les propriétés de ces fonctions rendent leur évaluation délicate.

Le chapitre 3 est dédié au calcul analytique des relations de dispersions des plasmons de surface des tores métalliques. Nous verrons, tout d'abord, comment trouver ces relations, et enfin, comment exprimer les potentiels et les champs électriques relatifs aux différents modes.

Le chapitre 4 sera focalisé sur le problème de l'interaction d'un nanotore avec un champ électrique incident. Cette étude nous permettra d'anticiper les propriétés optiques d'un tel objet. Des expressions simples des sections efficaces d'extinctions seront obtenues dans le cas de tores fins.

Les formules des sections efficaces faisant intervenir explicitement les relations de dispersion de certains modes, leur évaluation sera réalisée dans le chapitre 5. La structure des modes propres sera également calculée et étudiée. Nous montrerons qu'un tore métallique possède un mode soutenant un moment dipolaire magnétique non nul alors que son

moment dipolaire électrique est nul.

Le chapitre 6 est dédié à la validation du modèle analytique. Nous effectuerons une comparaison entre plusieurs résultats analytiques et numériques. Nous comparerons également les spectres d'extinction expérimentaux et analytiques dans le cas des nanotubes d'or obtenus en incidence normale.

Nous concluons par une discussion des perspectives ouvertes par ce travail.

Chapitre 1

Interaction lumière-matière

Lors de l'interaction de la lumière avec la matière aux fréquences optiques, la nature favorise l'interaction dipolaire électrique. Ce phénomène explique l'absence de matériaux dont la perméabilité magnétique est différente de celle du vide à hautes fréquences [19]. Après quelques rappels sur les équations de Maxwell et sur les systèmes d'unités, nous évoquerons une nouvelle classe de matériaux artificiels, développés récemment, possédant un indice de réfraction négatif aux basses fréquences. Cette extraordinaire propriété est associée à une perméabilité magnétique négative. La perspective de réaliser un indice de réfraction négatif aux fréquences optiques a déclenché des recherches sur des structures artificielles susceptibles de posséder un dipôle magnétique à ces fréquences. En plus des attentes soulevées par une éventuelle dispersion de la perméabilité magnétique, la possibilité d'identifier de tels dipôles magnétiques ouvre certaines perspectives inédites dans le domaine de l'électrodynamique quantique.

Dans la seconde partie du chapitre, nous décrirons les phénomènes de diffusion et d'absorption d'une onde électromagnétique incidente par des particules dont la réponse est modélisée par une fonction diélectrique. Nous nous intéresserons plus particulièrement aux interactions lumière-matière dans les systèmes mésoscopiques et nanoscopiques. Après des rappels sur la méthode du développement multipolaire ainsi que sur la théorie de la diffraction de Mie, nous étudierons les modes de plasmon pour des particules sphériques et cylindriques afin de discuter les expériences de détection du champ magnétique en champ proche. Nous verrons que des expériences sont des preuves indirectes qu'un mode de plasmon de surface lié à la pointe peut soutenir un dipôle magnétique aux fréquences optiques. Cet indice motivera l'étude des plasmons de surface de particules toriques.

1.1 Systèmes d'unités et équations de Maxwell

La définition des unités est un point délicat en électromagnétisme. J.M. Maxwell fut le premier à réussir à inclure des unités électriques et magnétiques dans le système métrique. Durant la première moitié du XIXe siècle, le système CGS (centimètre, gramme, seconde) fut le plus utilisé. Historiquement, les équations de Maxwell furent donc écrites dans ce système :

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r},t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}(\mathbf{r},t)}{\partial t} \quad (1.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}(\mathbf{r},t)}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \mathbf{J}_{ext}(\mathbf{r},t) \quad (1.2)$$

Les vecteurs $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$ et $\mathbf{B}(\mathbf{r},t)$ sont appelés respectivement vecteur électrique et induction magnétique. L'effet des champs sur la matière est introduit au travers de la densité de courant extérieur $\mathbf{J}_{ext}(\mathbf{r},t)$, du déplacement électrique $\mathbf{D}(\mathbf{r},t)$, et du vecteur magnétique $\mathbf{H}(\mathbf{r},t)$. Ces équations sont complétées par deux autres relations :

$$\nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r},t) = 4\pi \rho_{ext}(\mathbf{r},t) \quad (1.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r},t) = 0 \quad (1.4)$$

où $\rho_{ext}(\mathbf{r},t)$ est la densité de charge électrique extérieure.

Ces quatre équations relient donc cinq quantités vectorielles ($\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$, $\mathbf{B}(\mathbf{r},t)$, $\mathbf{H}(\mathbf{r},t)$, $\mathbf{D}(\mathbf{r},t)$ et $\mathbf{J}_{ext}(\mathbf{r},t)$) et une quantité scalaire ($\rho_{ext}(\mathbf{r},t)$). Pour qu'une résolution soit possible, il est nécessaire d'introduire les relations qui décrivent la réponse des milieux aux champs. Complicées en général, ces relations dites constitutives, sont supposées linéaires dans le présent travail :

$$\mathbf{D}(\mathbf{r},t) = \int_0^{+\infty} d\tau \int d\mathbf{r}' \varepsilon(\mathbf{r} - \mathbf{r}',\tau) \mathbf{E}(\mathbf{r}',t - \tau) \quad (1.5)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r},t) = \int_0^{+\infty} d\tau \int d\mathbf{r}' \mu(\mathbf{r} - \mathbf{r}',\tau) \mathbf{H}(\mathbf{r}',t - \tau) \quad (1.6)$$

$$\mathbf{J}_{ext}(\mathbf{r},t) = \int_0^{+\infty} d\tau \int d\mathbf{r}' \sigma(\mathbf{r} - \mathbf{r}',\tau) \mathbf{E}(\mathbf{r}',t - \tau) \quad (1.7)$$

où $\varepsilon(\mathbf{r} - \mathbf{r}',\tau)$, $\mu(\mathbf{r} - \mathbf{r}',\tau)$ et $\sigma(\mathbf{r} - \mathbf{r}',\tau)$ représentent respectivement les réponses diélectrique, magnétique et de conduction linéaires du système de charges dans l'approximation dipolaire (les entités polarisables sont plus petites que la plus petite longueur d'onde associée à la décomposition de Fourier des champs appliqués \mathbf{E} et \mathbf{H}). $\tau = t - t'$ représente

le temps écoulé. Les transformées de Fourier des champs ($\mathbf{R} = \mathbf{J}, \mathbf{E}, \mathbf{D}, \mathbf{H}, \mathbf{B}$) :

$$\mathbf{R}(\mathbf{k}, \omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int d\mathbf{r} \mathbf{R}(\mathbf{r}, t) e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{i\omega t} \quad (1.8)$$

et des diverses réponses de la matière ($\alpha = \varepsilon, \mu, \sigma$) :

$$\alpha(\mathbf{k}, \omega) = \int_0^{+\infty} d\tau \int d\mathbf{r} \alpha(\mathbf{r}, \tau) e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{i\omega\tau} \quad (1.9)$$

permettent d'écrire les relations constitutives plus simplement dans l'espace réciproque :

$$\mathbf{D}(\mathbf{k}, \omega) = \varepsilon(\mathbf{k}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) \quad (1.10)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{k}, \omega) = \mu(\mathbf{k}, \omega) \mathbf{H}(\mathbf{k}, \omega) \quad (1.11)$$

$$\mathbf{J}(\mathbf{k}, \omega) = \sigma(\mathbf{k}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) \quad (1.12)$$

La perméabilité magnétique $\mu(\mathbf{k}, \omega)$ représente la capacité de la matière à se magnétiser sous l'action d'un champ magnétique tandis que la constante diélectrique $\varepsilon(\mathbf{k}, \omega)$ représente la réponse de la matière à un champ électrique. $\sigma(\mathbf{k}, \omega)$ désigne la conductivité électrique.

Dans le régime optique, la dispersion spatiale des champs est négligée ce qui s'exprime par $\mathbf{k} \rightarrow 0$. La fonction diélectrique, la perméabilité magnétique et la conductivité électrique sont alors définies dans le régime optique par :

$$\varepsilon(\omega) = \lim_{\mathbf{k} \rightarrow 0} \varepsilon(\mathbf{k}, \omega) \quad (1.13)$$

$$\mu(\omega) = \lim_{\mathbf{k} \rightarrow 0} \mu(\mathbf{k}, \omega) \quad (1.14)$$

$$\sigma(\omega) = \lim_{\mathbf{k} \rightarrow 0} \sigma(\mathbf{k}, \omega) \quad (1.15)$$

Dans la suite de ce travail, la dépendance temporelle des champs sera considérée comme harmonique ou comme étant une superposition de champs harmoniques. Posant :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) e^{-i\omega t} \quad (1.16)$$

les dérivées temporelles transforment les équations (1.1)-(1.4) comme suit :

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) = \frac{i\omega}{c} \mathbf{B}(\mathbf{r}) \quad (1.17)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) = -\frac{i\omega}{c} \mathbf{D}(\mathbf{r}) + \frac{4\pi}{c} \mathbf{J}_{ext}(\mathbf{r}) \quad (1.18)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r}) = 4\pi \rho_{ext}(\mathbf{r}) \quad (1.19)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.20)$$

avec

$$\mathbf{J}_{ext}(\mathbf{r}) = \sigma(\mathbf{r},\omega)\mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.21)$$

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \varepsilon(\mathbf{r},\omega)\mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.22)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \mu(\mathbf{r},\omega)\mathbf{H}(\mathbf{r}) \quad (1.23)$$

La dépendance en \mathbf{r} de ces trois quantités signifie que dans le cas d'un système inhomogène, les quantités $\varepsilon(\mathbf{r},\omega)$, $\mu(\mathbf{r},\omega)$ et $\sigma(\mathbf{r},\omega)$ sont supposées résulter de la juxtaposition spatiale des réponses macroscopiques $\varepsilon(\omega)$, $\mu(\omega)$ et $\sigma(\omega)$ de chaque milieu homogène inclu dans le système inhomogène. La dépendance en \mathbf{r} ne signifie donc pas que le transformée de Fourier spatiale

Les réponses diélectrique et magnétique du milieu entraînent donc l'apparition d'une polarisation et d'une aimantation de la matière. On définit alors la polarisation électrique $\mathbf{P}(\mathbf{r})$ et la magnétisation $\mathbf{M}(\mathbf{r})$ du milieu par :

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \frac{\mathbf{D}(\mathbf{r}) - \mathbf{E}(\mathbf{r})}{4\pi} = \frac{\varepsilon(\mathbf{r},\omega) - 1}{4\pi}\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \chi_e(\mathbf{r},\omega)\mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.24)$$

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}) = \frac{\mathbf{B}(\mathbf{r}) - \mathbf{H}(\mathbf{r})}{4\pi} = \frac{\mu(\mathbf{r},\omega) - 1}{4\pi}\mathbf{H}(\mathbf{r}) = \chi_m(\mathbf{r},\omega)\mathbf{H}(\mathbf{r}) \quad (1.25)$$

Les vecteurs $\mathbf{P}(\mathbf{r})$ et $\mathbf{M}(\mathbf{r})$ définissent respectivement le moment dipolaire électrique et magnétique par unité de volume. Les coefficients $\chi_e(\mathbf{r},\omega)$ et $\chi_m(\mathbf{r},\omega)$ représentent les susceptibilités électrique et magnétique du milieu.

Le vecteur polarisation $\mathbf{P}(\mathbf{r})$ permet de définir une densité de courant électrique induit en posant :

$$\mathbf{J}_{ind}(\mathbf{r}) = -i\omega\mathbf{P}(\mathbf{r}) = -\frac{i\omega}{4\pi}[\varepsilon(\mathbf{r},\omega) - 1]\mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.26)$$

Nous pouvons donc réécrire l'équation (1.18) sous la forme :

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) = -\frac{i\omega}{c}\mathbf{E}(\mathbf{r}) + \frac{4\pi}{c}[\mathbf{J}_{ind}(\mathbf{r}) + \mathbf{J}_{ext}(\mathbf{r})] \quad (1.27)$$

Les lettres SI désignent le Système International d'unités (mètre, kilogramme, seconde). Il s'agit d'un système d'unités cohérent approuvé internationalement qui est utilisé de nos jours de façon systématique par les ouvrages et publications scientifiques et techniques. Le système SI, basé sur les unités MKSA, remplace le système CGS. Les équations

de Maxwell, après transformation de Fourier, s'écrivent en SI comme suit :

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) = i\omega \mathbf{B}(\mathbf{r}) \quad (1.28)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) = -i\omega \mathbf{D}(\mathbf{r}) + \mathbf{J}_{ext}(\mathbf{r}) \quad (1.29)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r}) = \rho(\mathbf{r}) \quad (1.30)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.31)$$

Les relations constitutives font alors apparaître deux nouvelles constantes :

$$\mathbf{J}_{ext}(\mathbf{r}) = \sigma(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.32)$$

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \varepsilon_0 \varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{P}(\mathbf{r}) + \varepsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.33)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \mu_0 \mu(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{H}(\mathbf{r}) = \mu_0 (\mathbf{M}(\mathbf{r}) + \mathbf{H}(\mathbf{r})) \quad (1.34)$$

où ε_0 est la permittivité du vide ($\varepsilon_0 = 8.854 \cdot 10^{12} \text{ F.m}^{-1}$) et μ_0 est la perméabilité du vide ($\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ H.m}^{-1}$).

Dans cette thèse, sauf indication contraire, le système international est appliqué par défaut. Nous allons ponctuellement utiliser le système d'unités CGS, en particulier, lors des discussions sur les moments dipolaires électriques et magnétiques. En effet, dans le système CGS, les moments dipolaires électriques et magnétiques s'expriment sous les mêmes unités (statvolt.cm^{-2}), ce qui les rend comparables. Une table de conversion de l'un à l'autre des systèmes d'unités est l'objet de l'annexe A.

1.2 Dipôle magnétique aux fréquences optiques

1.2.1 Perméabilité magnétique aux fréquences optiques

La plupart des matériaux géologiques sont des matériaux diamagnétiques, paramagnétiques ou antiferromagnétiques. Leur permittivité est proche de celle du vide c'est à dire μ_0 . Cependant, les matériaux ferrimagnétiques et ferromagnétiques montrent des valeurs de perméabilité magnétique beaucoup plus élevées dans le domaine des basses fréquences (250 fois pour le cobalt et 600 fois pour le Nickel). Le domaine de l'optique correspond au régime des hautes fréquences, où la perméabilité magnétique ne diffère pas de celle du vide pour tous les matériaux. Afin de comprendre ce phénomène, reprenons le calcul de Landau et Lifchitz exposé dans leur ouvrage de 1969 [19]. Ce calcul consiste à chercher

dans quelle mesure la grandeur

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}) = \frac{\mathbf{B}(\mathbf{r}) - \mathbf{H}(\mathbf{r})}{4\pi} \quad (1.35)$$

conserve son sens physique de moment magnétique par unité de volume.

Par définition, le moment magnétique total créé par toutes les particules chargées en mouvement à l'intérieur du corps correspond à (unités CGS):

$$\mathbf{m} = \frac{1}{2c} \int (\mathbf{r} \times \overline{\mathbf{j}(\mathbf{r})}) d\mathbf{r} \quad (1.36)$$

$$= \int \mathbf{M}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (1.37)$$

où $\overline{\mathbf{j}(\mathbf{r})}$ est la moyenne temporelle de la densité microscopique de courant. $\overline{\mathbf{j}(\mathbf{r})}$ est reliée aux moyennes temporelles des champs électrique $\overline{\mathbf{e}(\mathbf{r})}$ et magnétique $\overline{\mathbf{b}(\mathbf{r})}$ microscopiques par l'équation de Maxwell microscopique :

$$\nabla \times \overline{\mathbf{b}(\mathbf{r})} = \frac{4\pi}{c} \overline{\mathbf{j}(\mathbf{r})} - \frac{i\omega}{c} \overline{\mathbf{e}(\mathbf{r})} \quad (1.38)$$

A l'échelle microscopique, il n'existe pas de champs $\mathbf{d}(\mathbf{r})$ et $\mathbf{h}(\mathbf{r})$. A l'échelle atomique ou moléculaire, tous les courants sont inclus dans $\overline{\mathbf{j}(\mathbf{r})}$. Prendre les moyennes temporelle et spatiale de cette relation permet de revenir à l'échelle macroscopique [20]:

$$\nabla \times \overline{\mathbf{b}(\mathbf{r})} = \frac{4\pi}{c} \overline{\mathbf{j}(\mathbf{r})} - \frac{i\omega}{c} \overline{\mathbf{e}(\mathbf{r})} \quad (1.39)$$

$$\Leftrightarrow \nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}) = \frac{4\pi}{c} \overline{\mathbf{j}(\mathbf{r})} - \frac{i\omega}{c} \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.40)$$

A l'échelle macroscopique, en l'absence de courant extérieur, l'équation (1.18) devient :

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) = -\frac{i\omega}{c} \mathbf{D}(\mathbf{r}) \quad (1.41)$$

En retranchant cette dernière équation à l'équation (1.40), nous obtenons l'égalité suivante (en vertu de (1.24)) :

$$c \nabla \times \mathbf{M}(\mathbf{r}) - i\omega \mathbf{P}(\mathbf{r}) = \overline{\mathbf{j}(\mathbf{r})} \quad (1.42)$$

En introduisant cette dernière égalité dans l'équation (1.36), nous avons :

$$\mathbf{m} = \frac{1}{2} \int (\mathbf{r} \times \nabla \times \mathbf{M}(\mathbf{r})) d\mathbf{r} - \frac{i\omega}{2c} \int (\mathbf{r} \times \mathbf{P}(\mathbf{r})) d\mathbf{r} \quad (1.43)$$

$$= \frac{1}{2} \int \mathbf{M}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} - \frac{i\omega}{2c} \int (\mathbf{r} \times \mathbf{P}(\mathbf{r})) d\mathbf{r} \quad (1.44)$$

$\mathbf{M}(\mathbf{r})$ n'a de sens physique (moment dipolaire magnétique par unité de volume) que si l'intégrale (1.36) ne peut être mise sous la forme :

$$\mathbf{m} = \int \mathbf{M}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (1.45)$$

Cela dépend donc de la possibilité à négliger le terme $\omega\mathbf{P}(\mathbf{r})$ dans la relation (1.42). Nous allons donc examiner quel est l'ordre de grandeur de chaque terme dans cette relation. Partons de :

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\frac{i\omega}{c}\mathbf{B}(\mathbf{r}) \quad (1.46)$$

donc $E \sim (\omega l/c)H$ où l est la dimension du corps. Comme $\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \chi_e \mathbf{E}(\mathbf{r})$, nous avons :

$$\omega P(\mathbf{r}) \sim \chi_e \omega E(\mathbf{r}) \sim \frac{\omega^2 l}{c} \chi_e H(\mathbf{r}) \quad (1.47)$$

Par définition $\mathbf{M}(\mathbf{r}) = \chi_m \mathbf{H}(\mathbf{r})$, donc les dérivées spatiales du moment magnétique ont pour ordre de grandeur :

$$c \nabla \times \mathbf{M}(\mathbf{r}) \sim \frac{c}{l} \chi_m H(\mathbf{r}) \quad (1.48)$$

Comparons à présent les expressions (1.47) et (1.48). Nous voyons que :

$$\omega P(\mathbf{r}) \ll c \nabla \times \mathbf{M}(\mathbf{r}) \quad (1.49)$$

équivalent à écrire :

$$l^2 \ll \frac{\chi_m}{\chi_e} \frac{c^2}{\omega^2} \quad (1.50)$$

Aux fréquences optiques, la susceptibilité magnétique χ_m a pour ordre de grandeur v^2/c^2 où v est la vitesse électronique moyenne dans les atomes, et la susceptibilité électrique est faible d'où $\chi_e \sim 1$. De plus, les fréquences sont telles que $\omega \sim v/a$ où a est la dimension atomique moyenne. L'inégalité devient donc pour le domaine optique :

$$l \ll a \quad (1.51)$$

Nous arrivons alors à une aberration. L'objet ne peut être plus petit que les dimensions atomiques. Landau et Lifchitz en concluent donc qu'il est nécessaire de poser $\mu = 1$. Dans le régime des hautes fréquences, les courants atomiques et moléculaires d'un matériau ne peuvent créer un dipôle magnétique. La perméabilité magnétique de ce matériau tend vers celle du vide.

Cependant, on peut imaginer le cas où une structure artificielle puisse créer un tel dipôle. Cette hypothèse fût envisagée dans le domaine des micro-ondes. Dans la référence

[21], les auteurs montrent qu'un matériau artificiel créé à partir d'éléments répétés peut avoir une forte réponse à l'application d'un champ électromagnétique. Si la taille et l'espacement de chaque élément sont plus petits que la longueur d'onde, le matériau structuré va se comporter comme un milieu continu vis-à-vis de l'onde incidente. Si ce milieu est composé de structures de taille l soutenant un dipôle magnétique, et séparées d'une distance d , la perméabilité magnétique ainsi créée peut s'écrire sous la forme approchée suivante lorsque $\omega \rightarrow \infty$:

$$\mu_{eff} \sim 1 - \frac{l^2}{d^2} \quad (1.52)$$

Le raisonnement tenu dans la référence [21] est applicable dans les fréquences optiques et aboutit à la même forme approchée de μ_{eff} . Nous avons donc maintenant que χ_m a pour ordre de grandeur l^2/d^2 . Dans ce cas, la relation (1.50) devient :

$$d \ll \frac{c}{\omega} \sim \lambda \quad (1.53)$$

Il est donc envisageable de créer une perméabilité magnétique effective différente de celle du vide aux hautes fréquences en structurant un matériau avec des objets de taille inférieure à la longueur d'onde et capables de soutenir un dipôle magnétique.

1.2.2 Quête de l'indice de réfraction négatif

La constante diélectrique ε et la perméabilité magnétique μ sont des quantités caractéristiques fondamentales qui déterminent la propagation ou l'interaction d'une onde électromagnétique avec un matériau. Elles permettent de définir l'indice de réfraction du milieu par :

$$n^2 = \varepsilon\mu \quad (1.54)$$

Cet indice intervient dans de nombreuses relations physiques notamment dans la loi de réfraction de Snell-Descartes. Quand un rayon lumineux traverse une interface entre deux milieux, l'angle du rayon transmis dépend du contraste entre les indices de réfraction des milieux. Pour tout les matériaux naturels, l'indice de réfraction prend des valeurs positives. En 1968, Victor Veselago [22] s'intéressa au cas d'un matériau hypothétique possédant simultanément une perméabilité magnétique et une fonction diélectrique négatives. Le résultat fut surprenant : il montra qu'un tel matériau ne violait aucune loi de la physique et qu'il présentait une large variété de nouveaux phénomènes optiques. Le plus exotique de ces phénomènes est la réfraction négative (Figure 1.1). Pour un milieu naturel ($n > 0$), le vecteur \mathbf{k} forme avec les vecteurs $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ et $\mathbf{H}(\mathbf{r})$ un trièdre direct (main droite). Dans le

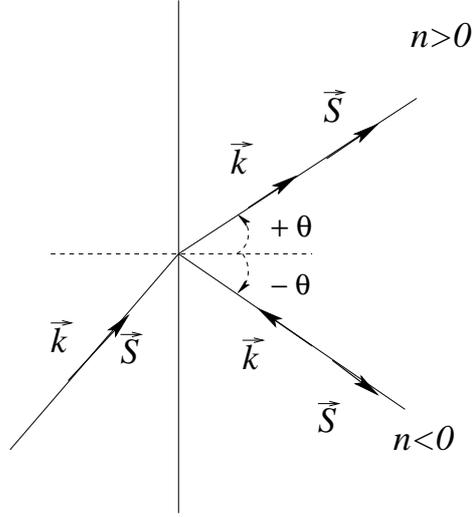


FIG. 1.1 – Réfraction négative par un matériau à indice négatif: l'angle de réfraction ainsi que le sens du vecteur d'onde s'inverse par rapport à une réfraction positive.

cas d'un milieu où la perméabilité magnétique et la fonction diélectrique sont négatives, le vecteur d'onde \mathbf{k} forme avec les vecteurs $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ et $\mathbf{H}(\mathbf{r})$ un trièdre indirect (main gauche). Le vecteur d'onde associé à l'onde dans le milieu $k = n \frac{\omega}{c}$ présente donc une inversion alors que le sens du vecteur de Poynting ne change pas puisque celui-ci ne dépend pas de l'indice du milieu (SI):

$$\mathbf{S}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) \quad (1.55)$$

L'indice n d'un tel milieu est alors négatif:

$$k = n \frac{\omega}{c} = -\sqrt{\varepsilon\mu} \frac{\omega}{c} \quad (1.56)$$

En rapport avec l'inversion du sens de \mathbf{k} , les matériaux à indice de réfraction négatif (MIRN) sont appelés "Left-Handed Materials" (matériaux main gauche). Cette inversion entraînant également celle de la vitesse de phase, ces matériaux sont quelquefois appelés "negative phase velocity media" (matériaux à vitesse de phase négative) [23, 24].

Pour les MIRN, on peut également s'attendre à un effet Doppler et un décalage Goos-Hänchen inversés [25]. Toutefois, un matériau de fonction diélectrique et de perméabilité magnétique toutes deux négatives aux mêmes fréquences, n'existe pas dans la nature [26] [27]. Cette remarque explique que pendant trente ans, l'idée de Veselago ne fut jamais testée.

En 2000, J. B. Pendry relança le sujet en démontrant que le changement de signe qui apparaît alors dans la loi de Snell-Descartes permet la création d'une lentille "parfaite", si la perméabilité magnétique et la fonction diélectrique du MIRN sont toutes deux égales à -1 [17]. Un film mince composé de ce matériau va focaliser les rayons lumineux émis par une source dans un plan image (figure 1.2(a)). Rappelons que la limite de résolution d'une lentille classique provient des grandes valeurs de la composante transverse du vecteur d'onde :

$$k_z = +i\sqrt{k_x^2 + k_y^2 - \frac{\omega^2}{c^2}} \quad (1.57)$$

avec $\frac{\omega^2}{c^2} < k_x^2 + k_y^2$. Ces valeurs de k_z correspondent à des ondes évanescentes, c'est-à-dire des ondes dont la décroissance est exponentielle en z . La lentille ne permet aucune correction de phase pour ces ondes, il n'y a donc pas de focalisation. L'image formée par la lentille n'est donc composée que par les ondes propagatives de l'objet. La résolution de l'image ne peut donc être plus grande que la longueur d'onde :

$$\Delta \sim \frac{2\pi}{k_{max}} = \frac{2\pi c}{\omega} \lambda \quad (1.58)$$

Dans le cas du matériau à indice de réfraction négative, la situation est différente. Les valeurs négatives de permittivité et de la perméabilité vont permettre de focaliser les modes de champ proche de la source. Chaque composante évanescente va être amplifiée exponentiellement par le film, ce qui va compenser la décroissance exponentielle de ces modes dans le milieu extérieur. Le milieu à indice de réfraction négatif joue alors le rôle d'amplificateur et focaliseur d'ondes évanescentes (figure 1.2(b)).

Théoriquement, la résolution d'une telle lentille est infinie puisque les ondes propagatives et évanescentes contribuent à la formation de l'image ($k_{max} \rightarrow +\infty$). Expérimentalement, ceci est irréalisable puisque l'absorption par un milieu n'est jamais nulle. L'autre difficulté provient de l'obtention de $\varepsilon = \mu = -1$ à la même fréquence. Malgré ces limites, la résolution évaluée en tenant compte de ses paramètres est bien inférieure à la longueur d'onde [28].

Cette perspective a lancé une véritable quête de l'indice de réfraction négatif puisque les applications d'une telle lentille peuvent être très importantes [29], notamment dans le domaine de la micro-nano fabrication et de l'optique. Si un MIRN n'existe pas naturellement, il peut être créé artificiellement. Dans la référence [30], les auteurs ont montré qu'une structure composée d'un arrangement périodique d'anneaux métalliques coupés et de fils conducteurs de tailles sub-longueur d'onde, possédait une perméabilité magnétique et une permittivité négatives dans le domaine des micro-ondes. Dans ce domaine de

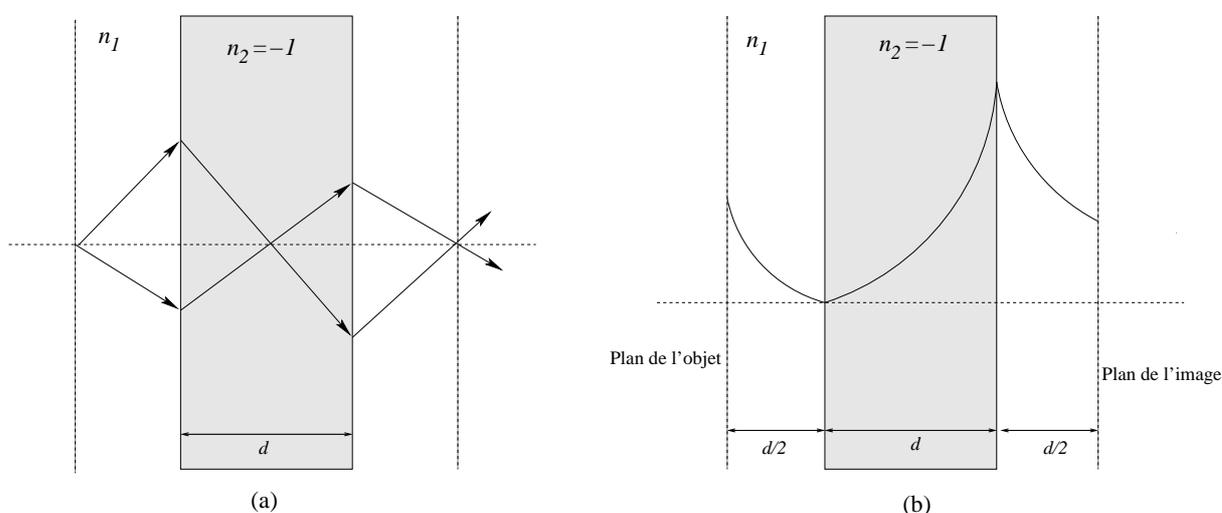


FIG. 1.2 – Schéma d'une lentille de Pendry-Veselago créée à partir d'un milieu d'indice $n_2 = -1$.

fréquences, les anneaux coupés soutiennent chacun un dipôle magnétique. L'arrangement périodique de ces anneaux est choisi afin de créer une perméabilité effective à la fréquence voulue. Les fils conducteurs sont chargés de créer une fonction diélectrique négative à cette même fréquence. Ce milieu permet la première vérification expérimentale de la réfraction négative à une fréquence de 4,845 GHz [31].

La plupart des résultats furent obtenus dans le domaine des fréquences des micro-ondes ou des TeraHertz. Dans le domaine de l'optique, le challenge provient du fait que la perméabilité magnétique naturelle d'un matériau est égale à celle du vide. Toutefois, dans le champ proche, les réponses électrique et magnétique d'un matériau peuvent être découplées, ce qui fait que pour une onde transverse magnétique (TM), seule la fonction diélectrique doit être considérée. La condition de focalisation du champ proche est alors facile à obtenir, puisqu'elle correspond à l'excitation d'un plasmon de surface d'un film métallique. Récemment, N. Fang et al. [32] ont mis en évidence ce phénomène en obtenant une image avec une résolution de 60 nm grâce à un film d'argent de 120 nm d'épaisseur et une lumière incidente de longueur d'onde de 365 nm. La résolution obtenue est donc bien sub-longueur d'onde, mais celle-ci pourrait être encore améliorée en utilisant d'autres métaux à l'absorption plus faible, ou bien d'utiliser un milieu structuré présentant une permittivité et une perméabilité proche de -1 , comme pour les micro-ondes. Cette dernière solution est plus complexe mais elle permettrait de pouvoir contrôler la fréquence en jouant sur les paramètres de la structure interne du milieu. Toutefois, cette solution requiert d'avoir des objets de taille sub-longueur d'onde soutenant un dipôle magnétique [10, 33,

34, 35, 36, 37, 38] .

1.2.3 Détection de la composante magnétique du champ optique

L'interprétation des images en microscopie optique de champ proche est une question délicate. Toutefois, il est maintenant bien établi que dans un microscope PSTM (Photon Scanning Tunneling Microscope), le signal collecté par la pointe est proportionnel à l'intensité du champ électrique ou du champ magnétique diffusé par la surface de l'échantillon [39, 40].

La pointe utilisée dans le microscope est généralement fabriquée à partir d'une fibre optique effilée à l'une de ses extrémités. L'apex, c'est-à-dire l'extrémité de la pointe, est approché de la surface et agit comme une sonde locale du champ proche du fait de ses dimensions sub-longueur d'onde. Une métallisation de la pointe est souvent réalisée afin d'améliorer le contraste des images. La pointe joue donc un grand rôle dans la nature du signal détecté. Avec la plupart des pointes utilisées, le signal collecté est proportionnel à la distribution de champ électrique au voisinage de l'échantillon. Cependant, avec certaines pointes métallisées et à des longueurs d'onde, le signal collecté change et devient proportionnel au champ magnétique associé à l'onde optique. Ce changement de nature du signal a été étudié en détail par E. Devaux [41].

Elle attribua le phénomène de changement de nature du signal à l'existence d'un mode de plasmon à symétrie circulaire dans la pointe. Si les valeurs expérimentales de la longueur d'onde et de l'épaisseur du revêtement métallique sont favorables à l'existence de modes de plasmons associés à la symétrie circulaire de ce revêtement autour de la pointe, le signal détecté est proportionnel au champ magnétique optique.

Pour bien comprendre ce phénomène, une étude théorique complète des modes de plasmons de surface dans la géométrie cylindrique a été ensuite entreprise par U. Schröter et al. [16]. Ce travail démontre que le mode de plasmons à symétrie circulaire $m = 1$ identifié expérimentalement dans la pointe, crée des dipôles magnétique et électrique.

Alors que dans le cas des atomes, le dipôle magnétique est d'amplitude beaucoup plus faible que le dipôle électrique dans le domaine des fréquences optiques, les moments dipolaires sont de même ordre de grandeur lorsqu'ils sont soutenus par un mode de plasmons de surface cylindriques $m = 1$. L'amplitude des moments dipolaires dépend très fortement des dimensions du cylindre. Pour des tailles de coeurs diélectriques et des épaisseurs du revêtement métallique correspondants aux pointes utilisées dans la détection du champ

magnétique [42], l'amplitude du moment dipolaire magnétique est plus grande que celle du dipôle électrique. Ce phénomène permet d'expliquer l'observation du champ magnétique en PSTM à l'aide des relations d'incertitude d'Heisenberg.

1.2.4 Relation d'incertitude d'Heisenberg

La première interrogation qui découle de l'expérience décrite auparavant, est le fait qu'aucun mélange du champ électrique et du champ magnétique n'a été observé. Le signal détecté correspondait toujours à l'un ou l'autre des deux champs. Pour comprendre ce comportement sélectif, il faut se rappeler la relation d'incertitude d'Heisenberg. Cette relation est très connue sous la forme faisant intervenir les opérateurs position \mathbf{x} et quantité de mouvement \mathbf{p} . En fait, l'inégalité de Heisenberg exprime le fait qu'il n'est jamais possible de déterminer simultanément la position et la quantité de mouvement avec une précision infinie. Les indéterminations sur les deux valeurs sont corrélées et reliées par la formule [43] ($i = x, y, z$):

$$\Delta x_i \Delta p_j \geq \hbar \quad (1.59)$$

avec $\hbar = \frac{h}{2\pi}$ où h est la constante de Planck.

Heisenberg a également appliqué le principe d'incertitude à l'électrodynamique [43]. Il a montré que les composantes du champ électrique \mathbf{E} et du champ magnétique \mathbf{H} sont des opérateurs qui ne commutent pas. Aux fréquences optiques, le principe d'incertitude s'exprime alors par l'inégalité suivante (unités S.I.):

$$\Delta E_i \Delta H_j \geq \frac{\hbar c^2}{2(\delta l)^4} \quad (1.60)$$

où δl est tel que δl^3 représente le volume de détection des champs. Du fait de la faible valeur de \hbar et du volume de détection beaucoup plus grand que la longueur d'onde, le membre de droite est en général très faible. (Fig. 1.3).

La forme des pointes utilisées expérimentalement varie suivant la technique de fabrication utilisée. On peut cependant considérer que le rayon de l'extrémité de la pointe plongée dans le champ évanescent varie entre 25 nm et 100 nm. En microscopie PSTM, le volume de détection correspondant à peu près au volume de l'apex, la valeur $\delta l = 100$ nm semble alors réaliste. Pour $\lambda = 540$ nm, le membre de droite dans l'équation d'Heisenberg (1.60) vaut alors :

$$\frac{\hbar c^2}{2(\delta l)^4} = 4,74 \cdot 10^7 \text{ mW} \cdot \text{mm}^{-2} = 13,81 \text{ mW} \cdot \lambda^{-1} \quad (1.61)$$

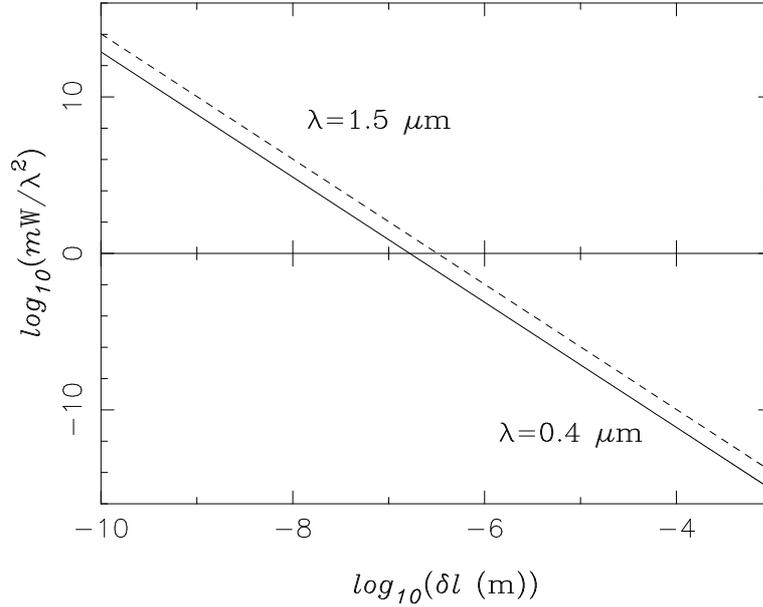


FIG. 1.3 – $\log\left(\frac{\hbar c^2}{2(\delta l)^4}\right)$ en fonction de $\log(\delta l)$. Plus le volume de détection est petit, plus le membre de droite dans l'inégalité d'Heisenberg (eq. 1.60) grandit. Une mesure simultanée du champ électrique et du champ magnétique n'est plus possible si δl est sub-longueur d'onde.

Comparé avec la puissance délivrée par un laser (les lasers les plus courants délivrent quelques $\text{mW}\cdot\text{mm}^{-2}$), cet ordre de grandeur ne peut être considéré comme négligeable .

Cette inégalité montre qu'une mesure simultanée (mesure sans influence réciproque) n'est pas possible si $\delta l < \lambda$. L'énergie est la somme des contributions électriques et magnétiques:

$$U = |E|^2 + |B|^2 \quad (1.62)$$

La mesure de l'énergie devient, elle aussi, incertaine. Au contraire de la microscopie classique, l'information recueillie en optique de champ proche est alors une mesure exclusive du champ électrique ou du champ magnétique suivant la nature du détecteur. En PSTM, le dipôle soutenue par la pointe servant de détecteur, le type de signal (électrique ou magnétique) dépend de la nature du dipôle.

Un élargissement important du spectre des valeurs possibles du champ électrique (magnétique) devrait donc être la conséquence de la détection du champ magnétique (électrique) dans un volume sub-longueur d'onde. En effet, l'examen détaillé des unités montre que le membre de droite $\frac{\hbar c^2}{2(\delta l)^4}$ de l'inégalité d'Heisenberg représente un flux par unité de surface $10^3 \text{ W}\cdot 10^{-6} \text{ m}^{-2}$. Il est instructif de comparer cette quantité au flux par unité de

surface $\mathbf{S} \cdot \mathbf{n}$ d'une onde plane $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0 e^{ik \cdot \mathbf{r}}$ [44]:

$$\mathbf{S} \cdot \mathbf{n} = \frac{k}{2\omega \mu_0} |\mathbf{E}_0|^2 = 4,74 \cdot 10^7 \text{ mW} \cdot \text{mm}^{-2} \quad (1.63)$$

Donc

$$|\mathbf{E}_0|^2 = 2 c \mu_0 \mathbf{S} \cdot \mathbf{n} \quad (1.64)$$

$$\approx 10^{13} \text{ V}^2 \cdot \text{m}^{-2} \quad (1.65)$$

Cette estimation des ordres de grandeur suggère que des valeurs importantes du champ électrique peuvent résulter de la mesure sur le champ magnétique, et ce même si la puissance incidente liée à l'onde plane est faible :

$$|\mathbf{E}_0| \approx 3 \cdot 10^6 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1} \quad (1.66)$$

On peut supposer qu'une nanostructure supportant un dipôle magnétique accomplirait une mesure sur le champ magnétique provoquant cet élargissement du spectre de valeurs sur le champ électrique. Des molécules situées au voisinage de la particule subirait les effets du champ électrique intense résultant du processus de mesure du champ magnétique. L'ordre de grandeur de $10^6 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$ est suffisant pour observer les déplacements des niveaux d'énergie atomique (effet Stark dynamique) [45].

Cette amplitude très importante du champ électrique peut également être très intéressante dans le cadre de la Diffusion Raman Exaltée de Surface (Surface Enhanced Raman Spectroscopy - SERS en anglais) [46, 47]. En effet, le signal Raman d'une molécule est proportionnel au produit de sa section efficace (probabilité d'interaction de la particule soit l'aire de la particule que doit rencontrer le photon) du nombre de molécules et de l'amplitude du champ électrique. Augmenter l'amplitude du champ électrique permet donc d'augmenter le signal Raman, naturellement très faible.

1.3 Diffusion de la lumière par des petites particules

Lorsqu'une particule est illuminée par une onde électromagnétique, deux principaux phénomènes physiques se produisent (figure 1.4). Le premier est la *diffusion*. Lorsqu'une particule est illuminée par un champ électromagnétique, les charges électriques présentes dans l'obstacle, oscillent sous l'action du champ électrique incident. Chaque charge déplacée réémet à son tour un champ électromagnétique dans toutes les directions. Le champ

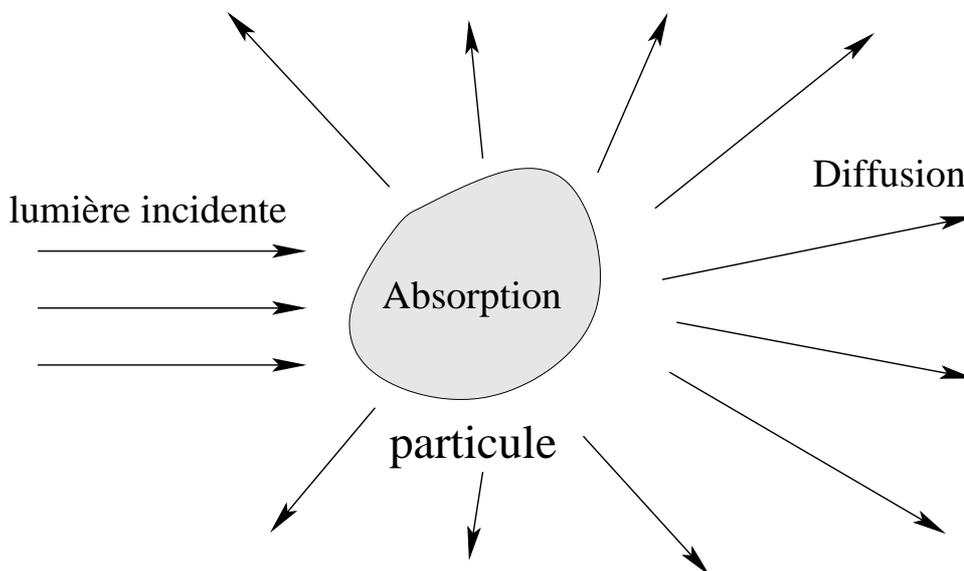


FIG. 1.4 – *Diffusion par une particule.*

diffusé par la particule correspond à la superposition du champ incident et des champs réémis par toutes les charges de l'obstacle. Le deuxième phénomène, appelé *absorption*, provient du fait qu'une partie de l'énergie électromagnétique incidente sera convertie sous une autre forme (sous forme d'énergie thermique principalement) par les différentes charges en mouvement.

Tout le monde connaît ces phénomènes au travers de leurs plus belles manifestations telles que le bleu du ciel, les arcs-en-ciel et la couleur laiteuse des nuages et du lait. Malheureusement, c'est souvent la réduction de visibilité liée à l'augmentation de fines particules de pollution dans l'atmosphère qui symbolise le mieux ce phénomène pour le grand public. Ces quelques exemples permettent de comprendre que la forme, la composition chimique et la taille de la particule diffusante vont donc jouer un rôle très important. Quand une particule est illuminée par une lumière incidente, la distribution angulaire de la lumière diffusée, ainsi que l'absorption, dépendent de la nature même de la particule. Le nombre de possibilités à étudier est donc pratiquement infini et la résolution des équations de Maxwell n'est possible que pour certains cas bien particuliers.

L'étude de l'interaction lumière-particule est classiquement séparée en trois régimes en fonction de la taille de la particule par rapport à la longueur d'onde incidente : les régimes macroscopique, mésoscopique et microscopique.

L'optique des systèmes macroscopiques est un régime où la longueur d'onde de la lumière incidente λ est beaucoup plus courte que la dimension d des objets diffuseurs. Citons comme exemple, l'interaction de la lumière avec une lentille d'un microscope. Les principaux phénomènes sont la réflexion et la réfraction qui sont particulièrement bien décrits par l'optique géométrique. Le phénomène de diffraction est décrit par la théorie de Kirchhoff dans laquelle la notion d'onde lumineuse apparaît explicitement. Cette théorie permet de déduire les intensités qui apparaissent dans les figures de diffraction dans les zones éloignées (zone de Fresnel et de Fraunhofer) des centres diffuseurs. Malheureusement, elle est complètement inadaptée pour rendre compte des phénomènes se produisant à proximité des centres diffuseurs. Cette limitation provient de l'approximation de la nature de la lumière par un champ scalaire, alors que les conditions de raccord de l'électromagnétisme sont intrinsèquement vectorielles.

L'optique des systèmes microscopiques s'intéresse aux interactions de la lumière avec des objets dont la taille est beaucoup plus petite que la longueur d'onde du champ incident ($\lambda \gg d$). L'approximation non-retardée est valable à ces échelles. Elle consiste à considérer la vitesse de la lumière c comme infinie, ce qui revient à négliger les effets magnétiques. On parle alors de "régime non-retardé" ou "d'approximation électrostatique". Dans ce cas, les équations de Maxwell sont grandement simplifiées et autorisent une résolution analytique dans de nombreux problèmes d'intérêt pratique. Rayleigh fut le premier à énoncer ce type de résultat. Il permet notamment d'expliquer la couleur bleue du ciel qui provient de la diffusion de la lumière visible par les petites particules et molécules qui composent l'atmosphère.

Lorsque les objets diffuseurs sont de tailles comparables à la longueur d'onde, on parle du régime mésoscopique. Pour le domaine des longueurs d'onde visibles, cela signifie que les particules interagissant avec la lumière ont une taille comprise entre 100 nm et $1 \mu\text{m}$. Hormis la description par une fonction diélectrique, aucune approximation des équations de Maxwell n'est satisfaisante pour décrire de tels systèmes. Seules quelques géométries permettent la séparation de variables dans le système d'équations aux dérivées partielles issu des équations de Maxwell. Depuis une dizaine d'années, la nanophotonique, l'optique miniaturisée, et les microscopes à champ proche connaissent un développement important. Une bonne connaissance des phénomènes physiques associés aux systèmes mésoscopiques et nanoscopiques y est primordiale.

Aux systèmes mésoscopiques et nanoscopiques correspondent les modèles mathématiques retardés et non retardés que nous décrirons dans la sous section suivante.

1.3.1 Régimes retardés et non retardés

Les équations de Maxwell forment le point de départ du traitement théorique de l'électromagnétisme dans le régime retardé. En absence de charges et de courant extérieurs, elles s'énoncent (SI) :

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) = i\omega\mu_0\mu(\mathbf{r},\omega)\mathbf{H}(\mathbf{r}) \quad (1.67)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) = -i\omega\varepsilon_0\varepsilon(\mathbf{r},\omega)\mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (1.68)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.69)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.70)$$

et conduisent aux équations d'onde vectorielles suivantes :

$$-\nabla \times \frac{1}{\mu(\mathbf{r},\omega)} \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon(\mathbf{r},\omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.71)$$

$$-\nabla \times \frac{1}{\varepsilon(\mathbf{r},\omega)} \nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \mu(\mathbf{r},\omega) \mathbf{H}(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.72)$$

Dans le cas d'un milieu homogène et non magnétique ($\mu(\mathbf{r},\omega) = 1$), il est possible d'utiliser l'identité :

$$\vec{\nabla}^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) = \nabla \nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) - \nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r})$$

pour obtenir les *équations de Helmholtz vectorielles* ($\vec{\nabla}^2$ est le laplacien vectoriel) :

$$\vec{\nabla}^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) + k^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.73)$$

$$\vec{\nabla}^2 \mathbf{H}(\mathbf{r}) + k^2 \mathbf{H}(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.74)$$

où la valeur de k est donnée par la relation de dispersion

$$k^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon(\mathbf{r},\omega) \mu_0 \quad (1.75)$$

Les équations (1.73) et (1.74) possèdent trois familles de solutions [48] :

$$\mathbf{L}_l(\mathbf{r}) = \nabla \psi_l(\mathbf{r}), \mathbf{M}_l(\mathbf{r}) = \nabla \times (\mathbf{c} \psi_l(\mathbf{r})), \mathbf{N}_l(\mathbf{r}) = \frac{1}{k} \nabla \times \mathbf{M}_l(\mathbf{r}) \quad (1.76)$$

construites à partir d'une fonction scalaire $\psi_l(\mathbf{r})$ qui satisfait à l'équation de Helmholtz scalaire :

$$\nabla^2 \psi_l(\mathbf{r}) + k^2 \psi_l(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.77)$$

et d'un vecteur constant de longueur unité \mathbf{c} . En absence de charge extérieure, les fonctions longitudinales \mathbf{L}_l n'existent que si $\varepsilon(\omega) = 0$ à la fréquence ω considérée. Dans le cas où $\varepsilon(\omega) \neq 0$, les champs électromagnétiques se construisent uniquement à partir des vecteurs propres $\mathbf{M}_l(\mathbf{r})$ et $\mathbf{N}_l(\mathbf{r})$:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \sum_l \{a_l \mathbf{N}_l(\mathbf{r}) + b_l \mathbf{M}_l(\mathbf{r})\} \quad (1.78)$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}) = -\frac{ik}{\omega\mu_0\mu} \sum_l \{a_l \mathbf{M}_l(\mathbf{r}) + b_l \mathbf{N}_l(\mathbf{r})\} \quad (1.79)$$

La résolution d'un problème de diffusion par une particule en régime retardé consiste donc à résoudre l'équation de Helmholtz scalaire afin de trouver l'expression de $\psi_l(\mathbf{r})$ et par suite celles des champs qui doivent respecter les conditions de raccord de l'électromagnétisme. Le système de coordonnées dans lequel s'effectue cette résolution est choisi en fonction de la géométrie de la particule.

Le régime non retardé consiste à considérer la vitesse de la lumière comme infinie ($c \rightarrow \infty$). Appliquer cette approximation revient à négliger les effets magnétiques et conduit à une analogie mathématique avec les équations de l'électrostatique, d'où l'expression "approximation électrostatique" souvent utilisée comme synonyme de "régime non retardé" [20]:

$$\nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.80)$$

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.81)$$

Le caractère irrotationnel du champs électrique est une condition nécessaire et suffisante à l'existence d'un potentiel scalaire $\Phi(\mathbf{r})$ dont le gradient est \mathbf{E} .

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\nabla\Phi(\mathbf{r}) \quad (1.82)$$

Cette équation définit un potentiel à une constante Φ_0 près. Dans le reste de cette étude, nous prendrons $\Phi_0 = 0$. En introduisant cette définition du potentiel dans l'équation (1.80), on aboutit à l'équation de Laplace :

$$\nabla^2\Phi(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.83)$$

Le problème est donc réduit à la détermination d'un potentiel scalaire $\Phi(\mathbf{r})$ qui vérifie en tout point de l'espace l'équation de Laplace et qui respecte des conditions de continuité du champ électrostatique sur la surface du centre diffuseur.

1.3.2 Extinction, diffusion et absorption

Plusieurs quantités sont nécessaires pour décrire l'interaction d'une particule de taille et de forme quelconques avec une onde incidente. Pour des champs incident ayant une dépendance temporelle harmonique, les champs $\mathbf{E}(\mathbf{r})$, $\mathbf{H}(\mathbf{r})$ solutions des équations de Maxwell correspondent à la superposition des champs incident $\mathbf{E}_0(\mathbf{r})$, $\mathbf{H}_0(\mathbf{r})$ et diffusés par la particule $\mathbf{E}_s(\mathbf{r})$, $\mathbf{H}_s(\mathbf{r})$:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) + \mathbf{E}_s(\mathbf{r}); \quad \mathbf{H}(\mathbf{r}) = \mathbf{H}_0(\mathbf{r}) + \mathbf{H}_s(\mathbf{r}) \quad (1.84)$$

Si nous construisons une sphère de rayon R très grand et centrée sur la particule, l'énergie qui traverse la sphère par unité de temps s'exprime par :

$$W_a = - \int_{\nu} \nabla \cdot \mathbf{S}(\mathbf{r}) \, d\mathbf{r} \quad (1.85)$$

où $\mathbf{S}(\mathbf{r})$ est la valeur moyenne temporelle du vecteur de Poynting :

$$\mathbf{S}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \Re\{\mathbf{E}(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}^*(\mathbf{r})\} \quad (1.86)$$

Le théorème de la divergence nous permet d'exprimer W_a comme une intégrale sur la surface S délimitant le volume ν de la sphère :

$$W_a = -R^2 \int_S \mathbf{S}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{n} \, d\Omega_n \quad (1.87)$$

$$= -\frac{R^2}{2} \Re \int_S \{\mathbf{E}(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}^*(\mathbf{r})\} \cdot \mathbf{n} \, d\Omega_n \quad (1.88)$$

où \mathbf{n} est un vecteur unité normal à l'élément d'aire $r^2 \, d\Omega_n$ ($d\Omega_n$: élément d'angle solide dans la direction n). Le vecteur de Poynting $\mathbf{S}(\mathbf{r})$ s'écrit sous la forme d'une somme de trois termes :

$$\mathbf{S}(\mathbf{r}) = \mathbf{S}_0(\mathbf{r}) + \mathbf{S}_s(\mathbf{r}) + \mathbf{S}_{ext}(\mathbf{r}) \quad (1.89)$$

où

$$\mathbf{S}_0(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \Re\{\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}_0^*(\mathbf{r})\} \quad (1.90)$$

$$\mathbf{S}_s(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \Re\{\mathbf{E}_s(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}_s^*(\mathbf{r})\} \quad (1.91)$$

$$\mathbf{S}_{ext}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \Re\{\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}_s^*(\mathbf{r}) + \mathbf{E}_s(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}_0^*(\mathbf{r})\} \quad (1.92)$$

$\mathbf{S}_0(\mathbf{r})$ est le vecteur de Poynting associé à l'onde incidente. $\mathbf{S}_s(\mathbf{r})$ est le vecteur de Poynting des champs diffusés par la particule et le vecteur de Poynting $\mathbf{S}_{ext}(\mathbf{r})$ est dû à l'interaction entre les champs incidents et diffusés [44]. La conservation de l'énergie (1.89) permet d'écrire W_a sous la forme d'une somme :

$$W_a = W_0 - W_s + W_{ext} \quad (1.93)$$

avec

$$W_0 = -\frac{R^2}{2} \Re \int_S \mathbf{S}_0(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{n} \, d\Omega_n \quad (1.94)$$

$$W_s = \frac{R^2}{2} \Re \int_S \mathbf{S}_s(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{n} \, d\Omega_n \quad (1.95)$$

$$W_{ext} = -\frac{R^2}{2} \Re \int_S \mathbf{S}_{ext}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{n} \, d\Omega_n \quad (1.96)$$

Si le milieu entourant la particule n'est pas absorbant, $\mathbf{S}_0(\mathbf{r})$ est indépendant de la position ($\mathbf{S}_0(\mathbf{r}) = \mathbf{S}$) et l'intégrale (1.94) s'annule ($W_0 = 0$). W_{ext} correspond alors à la somme de l'énergie absorbée W_a et de l'énergie diffusée W_s par unité de temps. L'extinction correspond donc à l'effet combiné de la diffusion et de l'absorption :

$$W_{ext} = W_s + W_a \quad (1.97)$$

Remarquons que si la particule n'est pas absorbante ($W_a = 0$), l'extinction correspond alors à la diffusion : $W_{ext} = W_s$.

Les sections efficaces de diffusion C_s , d'absorption C_a et d'extinction C_{ext} sont définies comme étant respectivement les énergies absorbée W_a , diffusée W_s et d'extinction W_{ext} par unité de temps rapportées à l'intensité de l'onde incidente I_0 . Les sections efficaces ont donc pour dimension celle d'une aire et ont pour expression :

$$C_s = \frac{W_s}{I_0} \quad (1.98)$$

$$C_a = \frac{W_a}{I_0} \quad (1.99)$$

$$C_{ext} = \frac{W_{ext}}{I_0} \quad (1.100)$$

1.3.3 Développement multipolaire

Nous allons considérer une particule de forme arbitraire placée dans un milieu non absorbant et illuminée par une onde plane. La particule crée une densité de courant induit

$\mathbf{J}_{ind}(\mathbf{r})$ en réponse aux champs incidents $\mathbf{E}_0(\mathbf{r})$ et $\mathbf{H}_0(\mathbf{r})$. L'expression (1.87) exprimant l'énergie traversant la sphère de surface S par unité de temps peut se reformuler à partir du théorème de Poynting sous la forme suivante [49]:

$$W_a = \frac{R^2}{2} \Re \int_{\nu} \mathbf{J}_{ind}^*(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) dr^3 \quad (1.101)$$

où ν est le volume delimité par S . L'intégrale $\int_{\nu} \mathbf{J}(\mathbf{r})^* \cdot \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) dr^3$ peut s'écrire sous forme d'un développement multipolaire:

$$\int_{\nu} \mathbf{J}_{ind}^*(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) dr^3 = \sum_{q=1}^3 \int_{\nu} J_q(\mathbf{r}) \cdot \left[E_q(\mathbf{r}) + \sum_{l=1}^3 r_l \frac{\partial E_l}{\partial r_l}(\mathbf{r}) + \dots \right] dr^3 \quad (1.102)$$

Si la particule est petite devant la longueur d'onde, le champ électrique est uniforme dans le volume de la particule. L'approximation consistant à ne garder que les premiers termes se justifie alors [20]. Dans toute notre étude, nous n'allons nous intéresser qu'aux termes relatifs aux dipôles électrique et magnétique. Les termes liés au quadrupôle électrique seront ici négliger:

$$\int_{\nu} \mathbf{J}_{ind}^*(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) dr^3 = -i\omega(\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) + \mathbf{m} \cdot \mathbf{B}_0(\mathbf{r})) \quad (1.103)$$

Les moments dipolaires électrique \mathbf{p} et magnétique \mathbf{m} sont reliés à la densité de courant $\mathbf{J}_{ind}(\mathbf{r})$ par:

$$\mathbf{p} = -\frac{1}{i\omega} \int d\mathbf{r} \mathbf{J}_{ind}(\mathbf{r}) \quad (1.104)$$

$$\mathbf{m} = \frac{1}{2c} \int d\mathbf{r} [\mathbf{r} \times \mathbf{J}_{ind}(\mathbf{r})] \quad (1.105)$$

Les intégrales se limitent au volume de l'objet puisque $\mathbf{J}_{ind}(\mathbf{r}) = 0$ en dehors de la particule. L'interaction entre une onde incidente et une petite particule peut donc être décrite, en première approximation, par l'interaction des champs incidents avec les dipôles établis par la particule en réponse à l'excitation. Classiquement, l'expression des moments dipolaires est trouvée en résolvant les équations de Maxwell avec les conditions de raccord entre les champs à la surface de l'objet, comme nous allons le voir au travers de l'exemple d'une particule sphérique.

1.3.4 Modes propres retardés d'une sphère diélectrique

Etudions dans un premier temps, les modes propres d'une sphère diélectrique ($\varepsilon_2(\omega)$, μ_2). La sphère est placée à l'origine d'un système de coordonnées sphériques (Fig 1.5).

$\varepsilon(\mathbf{r}, \omega)$ représente la constante diélectrique du système considéré : si $|\mathbf{r}| < a$, $\varepsilon(\mathbf{r}, \omega) = \varepsilon_2(\omega)$, sinon $\varepsilon(\mathbf{r}, \omega) = \varepsilon_1$ (Fig 1.5).

La solution de l'équation d'onde scalaire (1.77) exprimée en coordonnées sphériques (r, θ, φ) :

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \psi_l(\mathbf{r})}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin(\theta)} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial \psi_l(\mathbf{r})}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial^2 \psi_l(\mathbf{r})}{\partial \varphi^2} + k^2(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.106)$$

est bien connue [44] :

$$\psi_l(\mathbf{r}) = \psi_{\sigma nm}(\mathbf{r}) = P_n^m(\cos \theta) z_n(kr) \{ \cos(m\varphi) \delta_{\sigma, e} + \sin(m\varphi) \delta_{\sigma, o} \} \quad (1.107)$$

L'indices σ renseigne respectivement sur la parité paire e et impaire o de la solution en fonction de φ . Les conditions aux limites obligent les champs à être non divergents à l'origine et à l'infini ce qui impose que les $z_n(kr)$ soient les fonctions de Bessel sphérique ($j_n(kr)$) si $r < a$ et des fonctions de Hankel ($h_n(kr)$) si $r > a$ [50] [51]. Les fonctions $P_n^m(x)$ sont les polynômes de Legendre associés [52]. Les nombres quantiques principal (n) et azimuthal (m) prennent les valeurs suivantes :

$$n = 0, 1, 2, \dots, \infty \quad (1.108)$$

$$m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm n \quad (1.109)$$

Les vecteurs propres $\mathbf{M}_{\sigma nm}$ et $\mathbf{N}_{\sigma nm}$ sont habituellement générés à partir d'un vecteur constant \mathbf{c} . Dans le cas des coordonnées sphériques, ce vecteur arbitraire engendre des vecteurs $\mathbf{M}_{\sigma nm}$ et $\mathbf{N}_{\sigma nm}$ qui ne sont plus orthogonaux ni purement tangents sur toute une surface sphérique. Toutefois, si \mathbf{c} est remplacé par le vecteur position \mathbf{r} , les vecteurs

$$\mathbf{M}_{\sigma nm}(\mathbf{r}) = \nabla \times (\mathbf{r} \psi_{\sigma nm}(\mathbf{r})) \quad (1.110)$$

$$\mathbf{N}_{(\sigma nm)\mathbf{r}} = \frac{1}{k} \nabla \times \mathbf{M}_{\sigma nm}(\mathbf{r}) \quad (1.111)$$

alors générés retrouvent les propriétés souhaitées [49].

En coordonnées sphériques, les champs électrique et magnétique s'expriment alors sous la forme :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^{+n} \sum_{\sigma=e}^o \{ a_{\sigma nm} \mathbf{N}_{\sigma nm}(\mathbf{r}) + b_{\sigma nm} \mathbf{M}_{\sigma nm}(\mathbf{r}) \} \quad (1.112)$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}) = -\frac{ik}{\omega \mu_0 \mu} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^{+n} \sum_{\sigma=e}^o \{ a_{\sigma nm} \mathbf{M}_{\sigma nm}(\mathbf{r}) + b_{\sigma nm} \mathbf{N}_{\sigma nm}(\mathbf{r}) \} \quad (1.113)$$

où $a_{\sigma nm}$ et $b_{\sigma nm}$ sont des coefficients à déterminer

Afin de trouver les modes de la sphère, il faut appliquer les conditions de raccord des champs à l'interface de la sphère avec le milieu extérieur ($r = a$). Par un calcul complet qui ne présente pas de difficulté, on montre que pour chaque fréquence correspondante à un mode, le dénominateur d'un des coefficients $a_{\sigma nm}$ ou $b_{\sigma nm}$ devient nul et la fonction propre $\mathbf{M}_{\sigma nm}$ ou $\mathbf{N}_{\sigma nm}$ correspondante domine. Pour les modes $a_{\sigma nm} \neq 0$ et $b_{\sigma nm} = 0$, les fréquences sont solutions de l'équation suivante :

$$\frac{[k_1 a h_n(k_1 a)]'}{h_n(k_1 a)} = \frac{\mu_2 [k_2 a j_n(k_2 a)]'}{\mu_1 j_n(k_2 a)} \quad (1.114)$$

où les dérivées se calculent par rapport à la variable $k_1 a$. De même, les fréquences des modes $a_{\sigma nm} = 0$ et $b_{\sigma nm} \neq 0$ satisfont :

$$\frac{[k_1 a h_n(k_1 a)]'}{h_n(k_1 a)} = \frac{\mu_1 [k_2 a j_n(k_2 a)]'}{\mu_2 j_n(k_2 a)} \quad (1.115)$$

Les fréquences pour lesquelles les équations (1.114) et (1.115) sont exactement satisfaites, sont les fréquences propres de la sphère. La géométrie sphérique impose une dégénérescence en $2n + 1$

1.3.5 Modes de Mie

L'étude de la diffusion de la lumière par une sphère d'indice de réfraction différent de celui du vide, a débuté vers le XIXème siècle par M. Faraday. Ce n'est cependant qu'au début du XXème siècle que le problème fut résolu. Les articles célèbres de Mie [53] et Debye [54] datant respectivement de 1908 et 1909, restent des références sur ce sujet. Il n'est pas clair d'identifier qui des deux a construit le premier la solution du problème de la sphère, mais tous les livres et articles écrits par la suite, y ont associé le nom de Mie, dont l'article fut le premier sous presse. Le problème de Mie est la réponse d'une sphère isolée et homogène placée dans un milieu infini et également homogène (ε_1, μ_1), à une onde plane incidente. Les résultats de cette théorie sont d'une grande importance dans de nombreux domaines de la physique (astrophysique, optique de champ proche, météorologie, etc...), mais les difficultés de l'évaluation numérique ont longtemps entravé l'exploitation des résultats analytiques [55]. Le problème de la diffusion de Mie diffère de celui des modes propres par la présence d'une onde incidente de fréquence ω/c et d'amplitude E_0 .

Afin d'exprimer l'onde incidente et les conditions de raccord dans le même système de coordonnées, il est nécessaire de connaître le développement d'une onde plane sous la

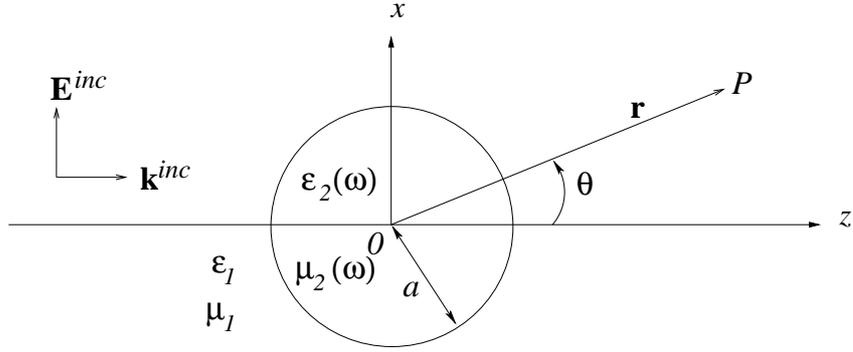


FIG. 1.5 – Diffusion d’une onde incidente $E_{inc}^{\vec{r}}$ par une sphère de rayon a , de constante diélectrique ϵ_2 et d’une perméabilité magnétique μ_2 . Le milieu extérieur est caractérisé par ϵ_1 et μ_1 .

forme des vecteurs propres que nous venons de trouver. Si l’onde incidente est polarisée dans la direction x et se déplaçant dans la direction z , la symétrie simplifie la dernière équation. Il ne reste que la contribution $m = 1$, ce qui donne un développement contenant des fonctions de Bessel sphérique de 1ère espèce pour la partie radiale et des fonctions de Legendre de 1ère espèce pour la partie angulaire (θ) [49]:

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) = E_0 \sum_{n=1}^{+\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (\mathbf{M}_{on1}^{(1)}(\mathbf{r}) - i\mathbf{N}_{en1}^{(1)}(\mathbf{r})) \quad (1.116)$$

De même pour le champ magnétique incident :

$$\mathbf{H}_0(\mathbf{r}) = -\frac{k}{\omega\mu_1} E_0 \sum_{n=1}^{+\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (\mathbf{M}_{e1n}^{(1)}(\mathbf{r}) + i\mathbf{N}_{o1n}^{(1)}(\mathbf{r})) \quad (1.117)$$

Remarquons ici que la présence du champ incident polarisé suivant l’axe Ox brise la symétrie sphérique et modifie les conditions de raccord par rapport à la situation sans champ incident. On peut alors anticiper le fait que seul les modes propres $m = 1$ pourront être excités.

Le champ total est formé de la somme des champs incidents et des champs diffusés par la sphère. La solution peut être exprimée comme une combinaison linéaire des fonctions propres puisqu’elles forment un système complet de fonctions orthogonales. Les propriétés, notamment leur caractéristique singulière ou non à l’origine, des fonctions utilisées nécessitent d’exprimer la solution sous deux formes. Une qui représentera les champs à l’intérieur de la sphère, et l’autre qui décrira les champs à l’extérieur. Ces solutions devront donc respecter les conditions de raccord à l’interface de la sphère. Ces calculs ne

présentent pas de difficulté particulière et amènent aux expressions des champs à l'intérieur de la sphère :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = E_0 \sum_{n=1}^{+\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (ic_n \mathbf{M}_{on1}^{(1)}(\mathbf{r}) - id_n \mathbf{N}_{en1}^{(1)}(\mathbf{r})) \quad (1.118)$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}) = -\frac{k_2}{\omega\mu_2} E_0 \sum_{n=1}^{+\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (d_n \mathbf{M}_{en1}^{(1)}(\mathbf{r}) + ic_n \mathbf{N}_{on1}^{(1)}(\mathbf{r})) \quad (1.119)$$

Pour les champs diffusés par la sphère, nous trouvons :

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{r}) = E_0 \sum_{n=1}^{+\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (ia_n \mathbf{M}_{on1}^{(3)}(\mathbf{r}) - b_n \mathbf{N}_{en1}^{(3)}(\mathbf{r})) \quad (1.120)$$

$$\mathbf{H}_s(\mathbf{r}) = -\frac{k_1}{\omega\mu_1} E_0 \sum_{n=1}^{+\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (ib_n \mathbf{M}_{en1}^{(3)}(\mathbf{r}) + a_n \mathbf{N}_{on1}^{(3)}(\mathbf{r})) \quad (1.121)$$

La présence de l'indice (3) indique un développement des fonctions $\mathbf{M}_{\sigma n1}^{(3)}(\mathbf{r})$ et $\mathbf{N}_{\sigma n1}^{(3)}(\mathbf{r})$ contenant des fonctions de de Hankel. Les coefficients a_n b_n c_n et d_n ne dépendent que de $k_1 a$ et de $k_2 a$:

$$a_n = \frac{\mu_2 j_n(k_2 a) [k_1 a j_n(k_1 a)]' - \mu_1 j_n(k_1 a) [k_2 a j_n(k_2 a)]'}{\mu_2 j_n(k_2 a) [k_1 a h_n^{(1)}(k_1 a)]' - \mu_1 h_n^{(1)}(k_1 a) [k_2 a j_n(k_2 a)]'} \quad (1.122)$$

$$b_n = \frac{\mu_1 j_n(k_1 a) [k_1 a j_n(k_1 a)]' - \mu_2 j_n(k_1 a) [k_2 a j_n(k_2 a)]'}{\mu_1 j_n(k_2 a) [k_1 a h_n^{(1)}(k_1 a)]' - \mu_2 h_n^{(1)}(k_1 a) [k_2 a j_n(k_2 a)]'} \quad (1.123)$$

$$c_n = \frac{\mu_1 j_n(k_1 a) [k_1 a h_n^{(1)}(k_1 a)]' - \mu_2 h_n^{(1)}(k_1 a) [k_1 a j_n(k_2 a)]'}{\mu_1 j_n(k_2 a) [k_1 a h_n^{(1)}(k_1 a)]' - \mu_2 h_n^{(1)}(k_1 a) [k_2 a j_n(k_2 a)]'} \quad (1.124)$$

$$d_n = \frac{\mu_2 j_n(k_1 a) [k_1 a h_n^{(1)}(k_1 a)]' - \mu_1 h_n^{(1)}(k_1 a) [k_1 a j_n(k_2 a)]'}{\mu_2 j_n(k_2 a) [k_1 a h_n^{(1)}(k_1 a)]' - \mu_1 h_n^{(1)}(k_1 a) [k_2 a j_n(k_2 a)]'} \quad (1.125)$$

A noter que le coefficient c_n (d_n) possède le même dénominateur que b_n (a_n) dont les zéros correspondent aux fréquences des modes propres données par l'équation (1.115) (Eq. (1.114)). La fréquence d'un mode propre est complexe, toutefois, si la partie imaginaire est petite et si la fréquence de l'onde incidente s'approche de celle de la partie réelle d'un mode propre, il apparaît un phénomène de résonance, appelée *résonance de Mie*.

Dans le cas de la sphère, les expressions de $\mathbf{E}_s(\mathbf{r})$ et $\mathbf{H}_s(\mathbf{r})$ conduisent aux expressions des sections efficaces de diffusion C_{sca} et d'extinction C_{ext} suivantes [56] :

$$C_{sca} = \frac{2\pi}{k_m^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad (1.126)$$

et

$$C_{ext} = \frac{2\pi}{k_m^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \Re(a_n + b_n) \quad (1.127)$$

$$= C_{sca}, \text{ si } \Im \varepsilon_2 = 0 \quad (1.128)$$

L'obtention de la solution analytique, résumée ici, est relativement facile pour le lecteur familiarisé avec les fonctions spéciales. Le problème de Mie est donc surtout un problème numérique puisqu'il nécessite de calculer les fonctions de Bessel ainsi que d'évaluer les séries contenues dans les différents coefficients. Ce problème numérique a fait l'objet de nombreux développements qui se sont amplifiés à partir des années 1970, date où la puissance de calcul des ordinateurs devenait suffisante pour aborder les différents régimes d'ordres de grandeurs [57][58][59][60].

1.3.6 Nanosphère

Pour une sphère de rayon a petit devant la longueur d'onde, vérifiant $|k_1 a| \ll 1$, les coefficients a_n et b_n peuvent être développés en puissance de $(k_1 a)$. Si $(k_1 a)$ est assez petit pour que les termes de puissance supérieure à 5 soient négligeables, seuls les coefficients suivants sont retenus [49] :

$$a_1 \simeq \frac{i}{45} (\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) (k_1 a)^5 \quad (1.129)$$

$$b_1 \simeq \frac{-2i}{3} \left(\frac{\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1}{\varepsilon_2(\omega) + 2\varepsilon_1} (k_1 a)^3 - \frac{1}{10} \frac{\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1}{\varepsilon_2(\omega) + 2\varepsilon_1} (k_1 a)^5 \right) \quad (1.130)$$

$$b_2 \simeq \frac{-i}{15} \left(\frac{\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1}{2\varepsilon_2(\omega) + 3\varepsilon_1} (k_1 a)^5 \right) \quad (1.131)$$

Dans le cas de sphère dont le rayon est très inférieur à la longueur d'onde, les termes en $(k_1 a)^5$ sont négligeables. Il ne reste alors que le terme lié au dipôle électrique. Le champ du mode fondamental pour une particule sphérique très petite correspond à la somme du champ incident et du champ d'une dipôle électrique orienté selon l'axe z , avec un moment dipolaire égal à :

$$\mathbf{p} = 4\pi\varepsilon_1 a^3 \alpha \mathbf{E}_0 \quad (1.132)$$

Avec cette approximation, les expressions des sections efficaces de diffusion et d'extinction se réduisent à :

$$C_{sca} \simeq \pi a^2 \frac{8}{3} (ka)^4 \left| \frac{\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1}{\varepsilon_2(\omega) + 2\varepsilon_1} \right|^2 \quad (1.133)$$

$$C_{ext} \simeq \pi a^2 4ka \Im \left(\frac{\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1}{\varepsilon_2(\omega) + 2\varepsilon_1} \right) \quad (1.134)$$

Pour un même environnement, le rapport des sections efficaces varie avec le volume des nanoparticules :

$$C_{sca}/C_{ext} \propto (a/\lambda)^3 \quad (1.135)$$

Dans l'approximation $a < \lambda$, le terme de diffusion est donc faible $(a/\lambda)^3 \ll 1$). L'extinction optique pour de petites particules est donc due essentiellement à leur absorption. Lorsque le rayon de la particule augmente, la diffusion devient plus importante et, finalement, domine l'extinction pour les grands rayons. L'approximation quasi-statique, valable pour typiquement $a/\lambda \ll 5$, n'est alors plus applicable.

La réponse optique est non seulement notablement modifiée par la taille de la sphère, mais aussi par sa composition chimique. La polarisabilité, les champs électriques et les coefficients de diffusion et d'extinction présentent une exaltation si $\varepsilon_2(\omega) = -2\varepsilon_1$. Si le milieu extérieur est tel que $\varepsilon_1 > 0$, ceci implique que $\varepsilon_2 < 0$. Aux fréquences optiques, ceci se produit dans le cas des métaux. C'est la résonance de plasmon de surface. Celle-ci est donc un effet associé à la fonction diélectrique :

$$\varepsilon_2(\omega_{sp}) = -2\varepsilon_1 \quad (1.136)$$

La fréquence du mode de plasmon d'une nano-sphère métallique dépend du type de métal et du milieu extérieur. Pour une nano-sphère d'or dont la fonction diélectrique est décrite par le modèle de Drude et plongée dans l'air ($\varepsilon_1 = 1$), la fréquence de résonance est $\omega_{sp}^{air}/c = 16,105 \mu m^{-1}$ (soit $\lambda = 380 \text{ nm}$) si les effets dus à l'amortissement des électrons dans le métal ne sont pas pris en compte ($\Im\varepsilon_2(\omega) = 0$) [61].

1.3.7 Approximation électrostatique

Les résultats obtenus par l'application de l'approximation des petites particules à la formule de Mie peuvent être obtenus directement dans le cadre de l'approximation de l'électrostatique. Le champ électrique se déduit alors d'un potentiel scalaire $\Phi(\mathbf{r})$ qui

satisfait l'équation de Laplace. Si dans un premier temps la sphère métallique n'est soumise à aucun champ appliqué, la séparation de variables entraîne les expressions suivantes pour le potentiel intérieur Φ^{in} et extérieur Φ^{out} de la particule :

$$\Phi^{\text{in}}(r,\theta,\phi) = \sum_{l,m} A_l^m r^l P_l(\cos\theta) e^{im\phi} \quad (1.137)$$

$$\Phi^{\text{out}}(r,\theta,\phi) = \sum_{l,m} B_l^m r^{-(l+1)} P_l(\cos\theta) e^{im\phi} \quad (1.138)$$

où les $P_l(\cos\theta)$ sont les fonctions de Legendre. Les conditions de continuité entre le milieu $\varepsilon_2(\omega)$ de la sphère et le milieu extérieur ε_1 , donnent la relation de dispersion des modes propres :

$$\varepsilon_2(\omega) = -\varepsilon_1 \frac{l+1}{l} \quad \text{avec } l = 1, 2, 3, \dots \quad (1.139)$$

l est le nombre quantique issu de cette séparation de variable. Cette relation indique que les modes propres d'une petite sphère métallique ne montrent pas de dispersion. Le mode de plus petit ordre ($l = 1$) possède un champ électrique uniforme dans toute la sphère. Ce mode est appelé *mode polarisation uniforme* ou *mode de FRÖHLICH*. Il correspond donc au mode principal de la sphère et sa fréquence est définie par :

$$\varepsilon_2(\omega_{sp}) = -2\varepsilon_1 \quad (1.140)$$

Notons également que plus l est grand, plus le champ est localisé à proximité de la surface. Cette localisation justifie le nom de *mode de surface localisé* pour un mode plasmon.

La sphère métallique est maintenant placée dans un milieu où il existe un champ électrique uniforme et statique $\mathbf{E}_0 = E_0 \mathbf{e}_z$. Ce champ va donc être modifié si la sphère et le milieu extérieur présentent des fonctions diélectriques différentes. Le problème est de trouver les nouveaux potentiels électrostatiques perturbés à l'intérieur et à l'extérieur de la sphère. La présence du champ \mathbf{E}_0 rajoute une condition sur les potentiels : pour $r \rightarrow \infty$, $\Phi^{\text{out}} \rightarrow \Phi_0$, où $\Phi_0 = -E_0 z$ est le potentiel lié au champ \mathbf{E}_0 . Dans l'expression du potentiel extérieur à la sphère, une solution divergente pour $r \rightarrow \infty$ doit donc être ajoutée. Les potentiels s'écrivent alors :

$$\Phi^{\text{in}}(r,\theta,\phi) = \sum_l A_l r^l P_l(\cos\theta) \quad (1.141)$$

$$\Phi^{\text{out}}(r,\theta,\phi) = \sum_l [B_l r^{-(l+1)} + C_l r^l] P_l(\cos\theta) \quad (1.142)$$

La symétrie du problème rend les potentiels indépendants de l'angle azimuthal ϕ . Pour appliquer la condition de raccord à l'infini, le développement de la coordonnée z sur les fonctions de Legendre est nécessaire :

$$\Phi_0 = -E_0 z = -E_0 r \cos \theta = -E_0 r P_1(\cos \theta) \quad (1.143)$$

Le raccord des champs à l'infini impose que le seul coefficient C_l non nul soit $C_1 = -E_0$. Les autres coefficients sont déterminés par les conditions à la surface de la particule :

$$B_1 = \frac{\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1}{\varepsilon_2(\omega) + 2\varepsilon_1} a^3 E_0 \quad (1.144)$$

$$A_1 = -\frac{3\varepsilon_1}{\varepsilon_2(\omega) + 2\varepsilon_1} E_0 \quad (1.145)$$

Donc

$$\Phi^{\text{in}}(r, \theta, \phi) = -\frac{3\varepsilon_1}{\varepsilon_2(\omega) + 2\varepsilon_1} E_0 r \cos \theta \quad (1.146)$$

$$\Phi^{\text{out}}(r, \theta, \phi) = -E_0 r \cos \theta + \left(\frac{\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1}{\varepsilon_2(\omega) + 2\varepsilon_1} \right) \frac{a^3}{r^2} E_0 \cos \theta \quad (1.147)$$

Le champ électrique à l'extérieur de la sphère est donc la superposition du champ \mathbf{E}_0 et celui d'un dipôle électrique positionné à l'origine et dont le moment dipolaire est :

$$\mathbf{p} = 4\pi\varepsilon_1 a^3 \alpha \mathbf{E}_0 \quad (1.148)$$

Le champ électrique statique appliqué sur la sphère induit un moment dipolaire électrique proportionnel au champ. Remarquons que l'expression du moment dipolaire (1.148) est identique à l'expression (1.132) qui exprimait le moment dipolaire électrique soutenue par une sphère très petite par rapport à la longueur d'onde d'une onde plane incidente. Toutefois, contrairement la relation (1.148) obtenue avec un champ constant et uniforme, l'expression (1.132) possède une dépendance temporelle au travers du champ appliqué. La forme identique entre ces deux expressions suggère alors de rétablir une dépendance temporelle harmonique dans (1.148) :

$$\mathbf{p} = 4\pi\varepsilon_1 a^3 \alpha \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t} \quad (1.149)$$

Le moment dipolaire \mathbf{p} du dipôle localisé en $z = 0$ et illuminé par une onde plane polarisée selon l'axe z ($E_0 e^{ikx - i\omega t} \mathbf{e}_z$ oscille à la même fréquence que le champ appliqué [49]).

L'approximation électrostatique permet donc de rendre compte alors de l'interaction d'une onde plane avec une particule. L'avantage de cette approche est sa simplicité comparée à celle de Mie, mais elle n'est seulement valable que pour les très petites particules.

1.3.8 Nano-particules ellipsoïdales

Un ellipsoïde de constante diélectrique ε_2 , défini de façon générale par ses demi-axes a , b et c ($a > b > c$). L'ellipsoïde est une particule intéressante car il permet de décrire plusieurs types de formes : un disque lorsque $a = b > c$ ou une aiguille pour $a > b = c$. La réponse optique est notablement modifiée par la forme des objets. Elle peut être calculée analytiquement pourvu qu'ils présentent une symétrie suffisante. Malheureusement, à l'exception des cylindres de longueur infinie, la théorie exacte incluant les effets de retard de la diffusion par des particules géométriques non sphériques est très complexe. Heureusement, nous avons vu l'approximation non retardée simplifie la situation.

Le calcul des modes propres dans le cadre de cette approximation ne pose pas de problème pour des particules ellipsoïdales puisqu'il consiste à utiliser les conditions de raccord à la surface de la particule. Les expressions obtenues impliquent alors des facteurs de dépolarisation dépendant de la géométries L_i ($i = x, y, z$). Ces coefficients sont définis tels que $L_x + L_y + L_z = 1$. Pour une sphère, les trois facteurs sont identiques : $L_i = 1/3$ La réponse optique d'un ellipsoïde va dépendre essentiellement de la polarisation du champ appliqué. La polarisabilité α_i d'un ellipsoïde dans un champ électrique parallèle à l'axe i est :

$$\alpha_i = 4\pi abc \frac{\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1}{3(L_i \varepsilon_2(\omega) + (1 - L_i) \varepsilon_1)} \quad (1.150)$$

Les sections efficaces de diffusion et d'extinction ont pour expression :

$$C_{sca} = k \Im(\alpha_i) \quad (1.151)$$

$$C_{ext} = C_{sca} + \frac{k^4}{6\pi} |\alpha_i|^2 \quad (1.152)$$

La réponse optique d'un ellipsoïde métallique présente alors trois résonances plasmon associées aux trois axes. Ces résonances sont dégénérées dans le cas de la sphère. La fréquence de la résonance pour un ellipsoïde $\omega_{ellipse}^i$ va donc dépendre de la polarisation i de l'onde incidente, définie par rapport à l'orientation de la particule

$$L_i \varepsilon_2(\omega_{ellipse}^i) + (1 - L_i) \varepsilon_1 = 0 \quad (1.153)$$

où ε_1 est la constante diélectrique du milieu extérieur.

Pour le cas d'un sphéroïde, c'est-à-dire un ellipsoïde dont deux demi-axes sont identiques, $L_y = L_z = (1 - L_x)/2$ pour un type allongé ($a > b = c$), et $L_y = L_z = 1 - 2L_x$ pour

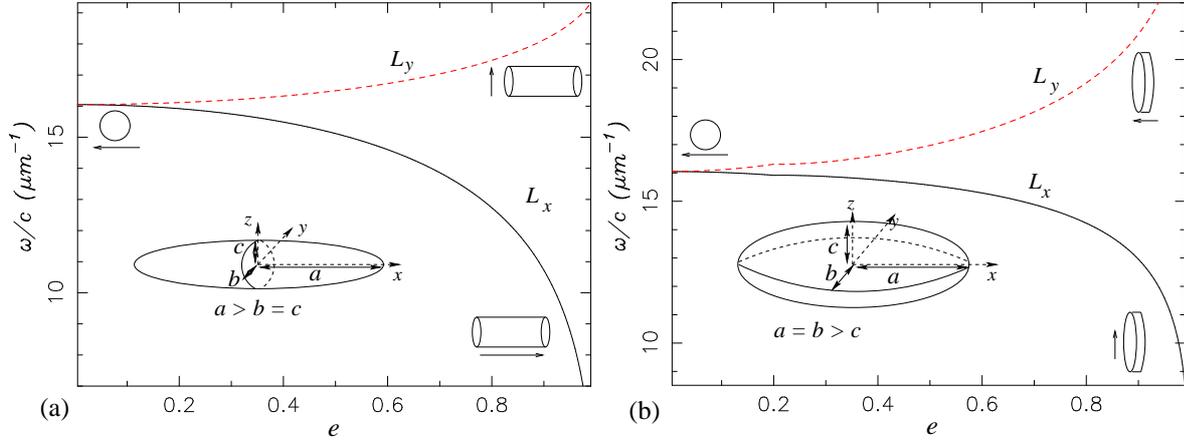


FIG. 1.6 – Effet de la forme d'un ellipsoïde d'or allongé (prolate) (a) et aplati (oblate) (b) sur la fréquence des modes de plasmon. Sur chaque graphique, nous avons représenté les formes extrêmes d'un sphéroïde ($e \rightarrow 1$ et $e \rightarrow 0$) et la direction du champ électrique de l'onde incidente.

un type aplati ($a = b > c$). L_x est dans ces deux cas relié à l'excentricité : $e^2 = 1 - b^2/a^2$ pour un ellipsoïde allongé et $e^2 = 1 - c^2/a^2$ pour ellipsoïde aplati. L'objet présente alors deux résonances dont les fréquences dépendent uniquement de la forme.

Nous avons représenté dans la figure 1.6, les fréquences des modes de plasmon dans le modèle de Drude pour une particule d'or, de forme sphéroïdale allongée ou (prolate en anglais) (a) et aplatie (oblate en anglais) (b), suivant la polarisation de la lumière incidente et en fonction de son excentricité. Le milieu extérieur est l'air, donc $\varepsilon_1 = 1$. Chaque ellipsoïde possède deux fréquences de résonance plasmon qui varient fortement en fonction de l'excentricité e [62]. Lorsque $e \rightarrow 0$, la forme d'un ellipsoïde tend vers celle d'une sphère. Les deux fréquences plasmon tendent alors vers la fréquence de résonance de la sphère ($\omega_{sp} = 16.05 \mu m^{-1}$ avec le modèle de Drude pour une sphère d'or). Pour $e \rightarrow 1$, la forme extrême des ellipsoïdes est différente suivant leur type. Pour le type allongé (prolate), l'ellipsoïde prend la forme d'une aiguille. Lorsque la polarisation est suivant l'axe principal, la courbe tend vers $-\infty$, et pour une polarisation perpendiculaire à cette axe, la fréquence de résonance tend vers la valeur $\omega_s = 19.6 \mu m^{-1}$ qui correspond à la condition $\varepsilon_2(\omega_s) = -\varepsilon_1 = -1$. Pour le type aplati (oblate), l'ellipsoïde prend la forme d'un disque. Lorsque la polarisation est parallèle au disque, la courbe tend vers $-\infty$, et pour une polarisation perpendiculaire au disque, la fréquence de résonance tend vers la valeur $\omega_p = 27.8 \mu m^{-1}$ qui correspond à la condition $\varepsilon_2(\omega_p) = 0$.

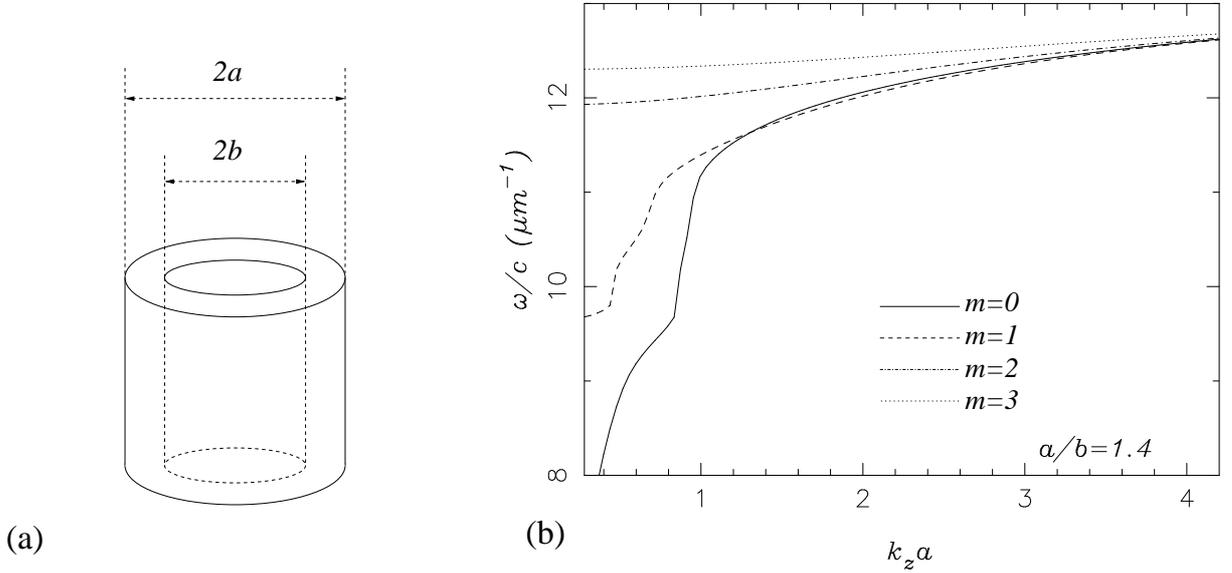


FIG. 1.7 – (a) Un cylindre de verre de rayon b est uniformément recouvert de métal d’une épaisseur $d = a - b$. (b) Courbes de dispersion des modes de surface $m = 0$ à $m = 3$ d’un cylindre métallisé avec de l’or pour le rapport $a/b = 1.4$.

1.3.9 Géométrie cylindrique

Les relations de dispersion des modes de plasmons de surface des cylindres métalliques ont particulièrement été étudiées durant les années 1970 par de nombreux auteurs [63, 64, 65]. Les applications de ces études étaient principalement tournées vers la physique des radars et des antennes.

Les modes des cylindres métalliques possédant un coeur diélectrique ont été étudié de façon théorique au début des années 90 [66]. La compréhension de ces modes optiques ont permis une meilleure interprétation des phénomènes en optique de champ proche. En effet, la pointe utilisée expérimentalement possède une géométrie proche de celle d’un cylindre diélectrique recouvert d’une fine couche de métal. La connaissance des résonances plasmons dans cette géométrie a joué un rôle important dans la compréhension de certaines images obtenues en champ proche. La résolution de l’équation de Laplace pour cette géométrie nécessite simplement une condition de raccord supplémentaire par rapport au cas du cylindre métallique puisqu’il y a deux interfaces : $r = a$ (diélectrique-métal) et $r = b$ (métal-milieu extérieur).

Dans l’approximation non retardée, la recherche de modes exponentiellement décrois-

sants de part et d'autre de la surface de métal permet d'écrire la forme générale du potentiel des modes de plasmons de surface :

$$\Phi(\mathbf{r}) = \begin{cases} I_m(rk_z)e^{\pm im\phi}e^{ik_z z}, & r < b \\ (a_m I_m(rk_z) + b_m K_m(rk_z))^{\pm im\phi}e^{ik_z z}, & b < r < a \\ c_m K_m(rk_z)e^{\pm im\phi}e^{ik_z z}, & r > a \end{cases} \quad (1.154)$$

où k_z désigne le vecteur d'onde selon l'axe z . Les coefficients a_m , b_m et c_m dépendent des valeurs des fonctions de Bessel modifiées de première I_m et de seconde K_m espèce, ainsi que de leurs dérivées aux interfaces. En appliquant les conditions de raccord aux différentes interfaces, la relation de dispersion s'écrit :

$$\begin{aligned} \left(\varepsilon_1 \frac{K'_m(ak_z)}{K_m(ak_z)} - \varepsilon_2(\omega) \varepsilon_1 \frac{I'_m(ak_z)}{I_m(ak_z)} \right) \left(\varepsilon_3 \frac{I'_m(bk_z)}{I_m(bk_z)} - \varepsilon_2(\omega) \frac{K'_m(bk_z)}{K_m(bk_z)} \right) \\ = \frac{I'_m(bk_z)K'_m(ak_z)}{I_m(ak_z)K_m(bk_z)} (\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1)(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_3) \end{aligned} \quad (1.155)$$

Cette relation dépend de la fréquence au travers de la fonction diélectrique du métal $\varepsilon_2(\omega)$. ε_1 et ε_3 représentent respectivement les constantes diélectriques du coeur du cylindre et du milieu extérieur. La relation de dispersion dépend également de manière implicite du rapport a/b entre les rayons intérieur et extérieur.

Nous avons calculé ces courbes de dispersion (Fig. 1.7b) pour un rapport $a/b = 1.4$ et un milieu diélectrique intérieur correspondant à du verre ($\varepsilon_1 = 2.25$). Le métal est l'or (modèle de Drude) et le milieu extérieur est l'air $\varepsilon_3 = 1$. Le mode $m = 0$ correspond aux plasmons se propageant le long du cylindre sans rotation autour de l'axe z , tandis que le mode $m = 1$ est un mode à symétrie circulaire autour de cet axe. Nous voyons d'après les courbes obtenues qu'un cylindre de verre métallisé avec de l'or possède des fréquences de résonance dans le visible.

U. Schröter et al. [16] ont montré que pour certains paramètres a et b la valeur du moment dipolaire magnétique peut dépasser celle du moment dipolaire électrique sur la branche $m = 1$. Le calcul du dipôle magnétique lié à une particule se fait généralement dans le cadre de la magnétostatique [49]. Pour des particules de perméabilité magnétique égale à celle du milieu extérieur, on montre alors que le moment dipolaire magnétique est nul. En optique, la perméabilité des matériaux est égale à celle du vide ($\mu = \mu_0$). Le moment magnétique des particules petites comparées aux longueur d'onde visible est donc toujours considéré comme nul. Les propriétés optiques de ces objets sont alors essentiellement dûes à l'interaction du dipôle électrique avec le champ électrique incident, comme nous l'avons vu dans les sections précédentes. Toutefois, dans le cadre d'expérience en

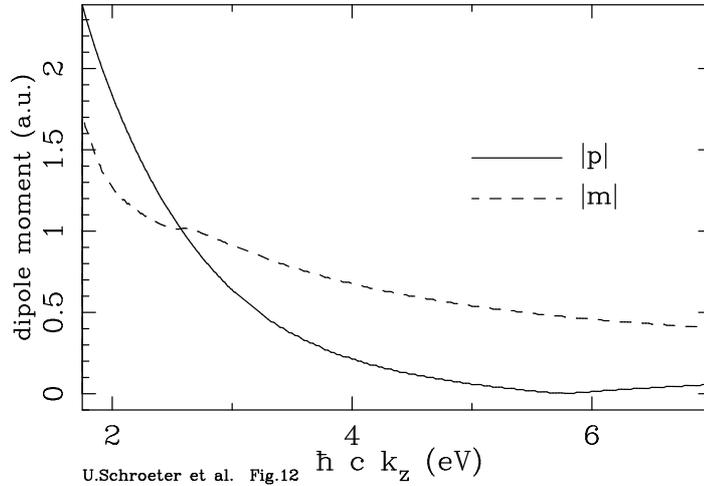


FIG. 1.8 – Figure issues de la référence[16]: moments dipolaires électrique et magnétique calculés aux fréquences du mode $m = 1$ d'un cylindre de verre de rayon 80 nm et métallisé avec 32 nm d'Au.

champ proche, la détection d'un signal proportionnel au champ magnétique est obtenu lorsque la pointe diélectrique métallisée soutient un dipôle magnétique. L'étude théorique menée par U. Schröter et al. [16] démontre que le mode de plasmons à symétrie circulaire $m = 1$ lié à un cylindre diélectrique et métallisé soutient un moment dipolaire magnétique supérieur au moment dipolaire électrique (cf figure 1.8).

1.3.10 Géométrie torique

Les travaux de Devaux et al. ainsi que ceux de Schröter et al. ayant établi que un cylindre diélectrique et métallisé peut soutenir un dipôle magnétique aux fréquences optiques à la résonance d'un de ses modes de plasmons de surface. On peut alors se poser la question de savoir si d'autres géométries peuvent produire cet effet. Nous avons déjà vu qu'une sphère métallique ne possédait pas cette propriété. Cette particularité observée dans la géométrie cylindrique se retrouve t-elle dans la géométrie qui s'en rapproche le plus, c'est-à-dire la géométrie torique?

Malgré l'intérêt récent que suscite les plasmons de surface de petites particules [67], la géométrie torique a été peu étudiée. Dans l'ouvrage classique de Morse et Feshbach [48], différents systèmes de coordonnées autorisant la séparation de variable dans l'équation de Laplace sont étudiés en détail. La géométrie torique et son système de coordonnées conduisant à la solution d'un tore parfaitement conducteur y sont traités. Des fonctions, dites "harmoniques toroïdales", sont introduites dans ce contexte. Ces fonctions s'avèrent diffi-

ciles à évaluer numériquement. En 1955, E. W. Hobson et Bateman [68][69] entreprirent l'investigation des propriétés de ces fonctions mais de nombreuses erreurs se glissèrent dans leur travail. En 1972, J. D. Love [70] publia la solution exacte au problème d'un tore diélectrique plongé dans un champ électrostatique uniforme et axial. Le calcul numérique stable des fonctions toriques n'étant pas résolu, le travail se limita à un nombre restreint de considérations analytiques.

Une alternative originale à la résolution exacte de l'équation de Laplace en coordonnées toriques a été introduite par J. Aizpura et al. [71]. Leur méthode consiste à chercher une relation de dispersion d'un anneau, et non d'un tore, à partir de la relation bien connue d'un film mince d'épaisseur d :

$$(\omega_{\pm})^2 = \omega_p^2 \frac{1 \pm e^{-kd}}{(1 + \varepsilon_2) \pm e^{-kd}(1 - \varepsilon_2)} \quad (1.156)$$

où la fonction diélectrique du métal est décrite par le modèle de Drude. Dans l'équation (1.156), ω_p représente la fréquence de plasma du métal (dans le cas de l'or $\omega_p = 27.8 \mu m^{-1}$). k est le vecteur d'onde et ω_{\pm} correspond aux cas des fréquences des modes symétrique (ω_-) et antisymétrique (ω_+) respectivement.

Dans le cas de l'anneau, Aizpura et al. supposent que le vecteur d'onde k est relié à la circonférence de celui-ci. Pour un anneau de rayon extérieur R_{ext} , k doit prendre les valeurs suivantes :

$$k = \frac{2\pi m}{2\pi R_{ext}} = \frac{m}{R_{ext}} \quad (1.157)$$

d'où

$$\omega_{\pm} = \pm \sqrt{\omega_p^2 \frac{1 \pm e^{-md/R_{ext}}}{(1 + \varepsilon_2) \pm e^{-md/R_{ext}}(1 - \varepsilon_2)}} \quad (1.158)$$

Le nombre m représente l'ordre du mode et l'effet du substrat est introduit via ε_2 . Cette relation de dispersion est illustrée par la figure 1.9 pour trois modes ($m = 1, m = 2, m = 3$) symétriques et antisymétriques. L'anneau d'or y est plongé dans l'air ($\varepsilon_2 = 1$).

D'après cette relation, les fréquences des modes (ω_+) et (ω_-) d'un anneau évoluent en fonction du rapport entre l'épaisseur de la couche métallique et le rayon intérieur. Lorsque l'épaisseur d de l'anneau augmente, les fréquences des modes convergent toutes vers $\omega_s = 19.6 \mu m^{-1} = 320 nm$. Cette fréquence est la fréquence du mode de plasmon de surface d'une interface plane. On retrouve ici le fait que si d est grand, la géométrie de l'anneau tend vers celle d'une surface plane. Pour la situation $d \rightarrow 0$, les fréquences des

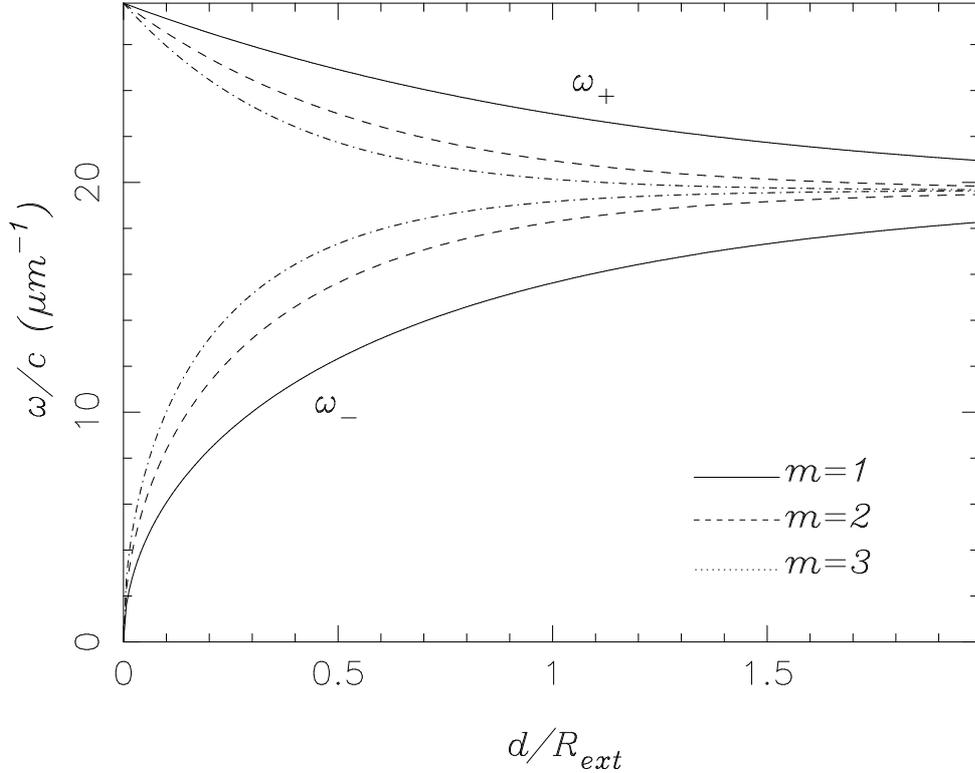


FIG. 1.9 – Fréquences des modes $m = 1$, $m = 2$ et $m = 3$ d'un anneau d'or en fonction du rapport d/R_{ext} d'après le modèle de Aizpurua et al.. La fonction diélectrique du métal est décrite par le modèle de Drude. Le milieu extérieur est de l'air. Les modes symétriques (ω_-) correspondent aux branches de basses fréquences, alors que les modes antisymétriques (ω_+) correspondent aux branches de hautes fréquences.

modes symétriques ω_- subissent un fort décalage vers le rouge ("red-shift") et s'annulent si $d = 0$. Les fréquences des modes ω_+ convergent vers la valeur de ω_p .

En dehors de ces situations extrêmes, la dépendance en fréquence des modes peut être interprétée comme une interaction entre la réponse d'un nano-disque et d'un trou dans un film mince [72]. Les modes plasmons d'un disque et d'un trou sont des excitations électromagnétiques qui induisent des charges de surface à l'intérieur et l'extérieur de l'anneau métallique. Les répartitions de charge liées aux plasmons du disque et du trou vont interagir suivant l'épaisseur de l'anneau. Cette interaction entraîne une levée de dégénérescence des modes d'un disque en deux nouvelles résonances. Comme pour les modes d'une sphère métallique creuse [73], les modes symétriques (ω_-) vont correspondre aux branches de basses fréquences, alors que les modes antisymétriques (ω_+) correspondent aux branches de hautes fréquences [74]. Par analogie avec la distribution de charges dans

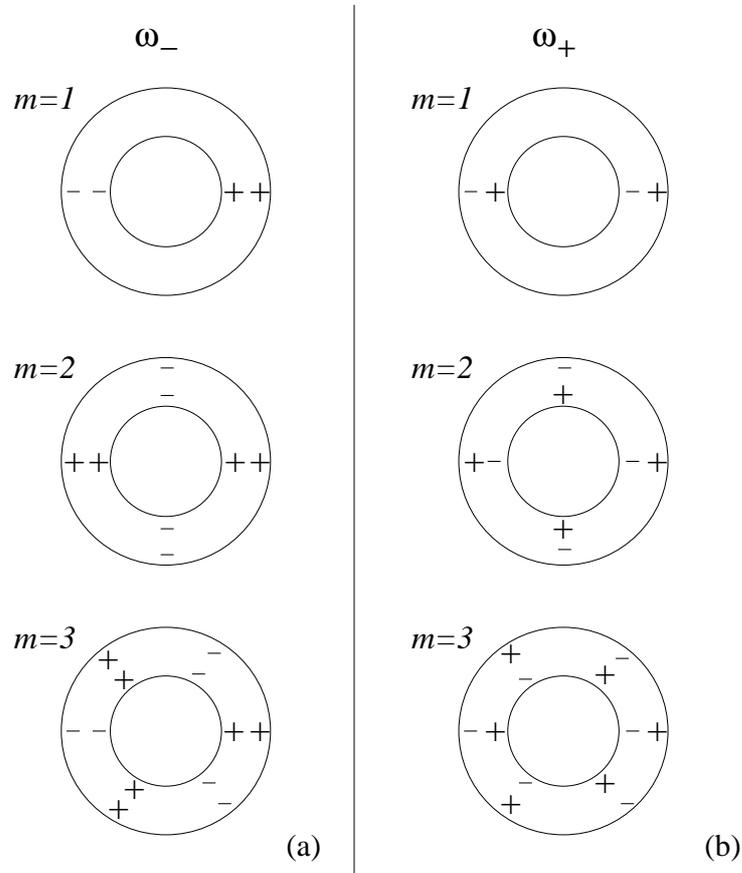


FIG. 1.10 – D’après le modèle de Aizpurua et al., représentations schématique des distributions superficielles des charges dans un anneau pour les modes $m = 1$, $m = 2$, $m = 3$ symétriques (a) et antisymétriques (b)

le cas du film mince, le mode symétrique est caractérisé par une distribution de charges superficielles de même signe à l’intérieur et à l’extérieur d’une section de l’anneau comme le montre la figure 1.10a. Le mode antisymétrique correspond à une distribution de charges de signes opposés le long d’une section (Fig 1.10b).

Remarquons pour terminer que le mode $m = 0$ caractérisé par l’absence de ”rotation” autour de l’axe de l’anneau ne présentent pas de dispersion :

$$\begin{aligned}\omega_- &= 0 \\ \omega_+ &= \omega_p\end{aligned}$$

Cette étude, basée sur un modèle très simple, a le mérite d’anticiper les tendances des modes d’un anneau métallique ainsi que les distributions de charges correspondantes.

Chapitre 2

Equation de Laplace en coordonnées toroïdales

Les fréquences propres des modes de surface des petites particules dépendent de leur forme, de leur taille ainsi que du métal. Ces fréquences sont bien restituées par l'approximation non retardée pour autant que leur taille typique a soit très inférieure à la longueur d'onde λ . On trouve dans la littérature des relations de dispersion de plasmons de petites particules dont les formes sont associées à des systèmes de coordonnées autorisant la séparation de variables de l'équation de Laplace (13 systèmes possibles), qu'il faut résoudre dans l'approximation non retardée. Tandis que le développement des techniques de fabrication par microscopie électronique ou par méthodes chimiques rend possible la création de nano-particules métalliques de formes de plus en plus complexes [75, 76, 77, 78, 79], la géométrie torique reste peu étudiée.

Motivés par ce manque de connaissance sur les modes optiques d'un tore métallique, nous allons, dans une première partie de ce chapitre, nous intéresser au système de coordonnées lié à la géométrie torique. Puis dans une seconde partie, nous détaillerons la séparation de variables dans l'équation de Laplace ainsi que les solutions des équations différentielles ordinaires auxquelles elle conduit.

2.1 Coordonnées toroïdales

2.1.1 Coordonnées bipolaires

Afin de construire le système de coordonnées toroïdales, nous allons nous intéresser dans un premier temps, au système de coordonnées bipolaires dans un plan (2 dimensions). Le système de coordonnées toroïdales sera construit par rotation du système de

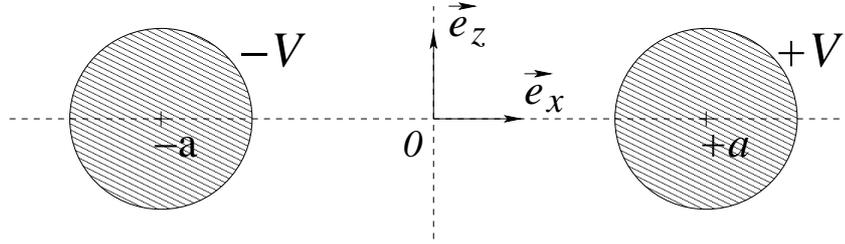


FIG. 2.1 – Construction des coordonnées bipolaires : ce système de coordonnées est construit à partir du problème de deux cylindres portés à des potentiels égaux en valeur absolue et de signes opposés, placés en $-a$ et $+a$.

coordonnées bipolaires.

Le système de coordonnées bipolaires est construit à partir du problème de deux cylindres de longueur infinie, portés à des potentiels égaux en valeur absolue V et de signes opposés, et dont les centres sont respectivement placés en $+a$ et $-a$ le long d'un axe x (Fig 2.1) .

Le potentiel complexe dû au cylindre chargé et placé en $+a$ sur l'axe $0x$ s'écrit :

$$F_{+a} = |K| \ln(w - a) + C_1 \quad (2.1)$$

où K est une constante et $w = x + iz$. De même, le potentiel dû au cylindre placé en $-a$ s'énonce :

$$F_{-a} = -|K| \ln(w + a) + C_2 \quad (2.2)$$

Le principe de superposition permet de conclure que :

$$F(w) = F_{+a} + F_{-a} = |K| \frac{\ln(w - a)}{\ln(w + a)} + C_1 + C_2 \quad (2.3)$$

Le potentiel complexe total est donc la somme des potentiels créés par le cylindre placé en $+a$ et par celui placé en $-a$. La contrainte physique de ce système porte sur la partie réelle du potentiel : $q_1(w) = \Re F(w) = 0$ si $w = 0$. Il n'y a pas de contrainte sur la partie imaginaire. Si $C_1 + C_2$ est imaginaire pur, il n'affectera pas $q_1(w)$.

Si on choisit $C_1 + C_2 = -i\pi$, $F(w)$ est de la forme :

$$F(w) = q_1 + iq'_2 = |K| \ln \left(\frac{a + w}{a - w} \right) \quad (2.4)$$

Afin de définir les coordonnées bipolaires, nous poserons $|K| = 1$. Les propriétés des fonctions hyperboliques nous permettent d'écrire [50, 80]:

$$q_1 + iq'_2 = F'(w) = \ln \left(\frac{w+a}{a-w} \right) = 2 \operatorname{atanh} \left(\frac{w}{a} \right) \quad (2.5)$$

D'où

$$w = x + iz = a \tanh \left(\frac{q_1 + iq'_2}{2} \right) = a \frac{\sinh q_1 + i \sin(q'_2)}{\cosh q_1 + \cos(q'_2)} \quad (2.6)$$

Si on pose $q'_2 = \pi - q_2$, nous obtenons les relations suivantes :

$$x = a \frac{\sinh q_1}{f(q_1, q_2)} \quad (2.7)$$

$$z = a \frac{\sin q_2}{f(q_1, q_2)} \quad (2.8)$$

avec :

$$f(q_1, q_2) = \cosh q_1 - \cos q_2 \quad (2.9)$$

Ces équations définissent les coordonnées bipolaires (q_1, q_2) .

Inversement, nous pouvons écrire (q_1, q_2) en fonction des coordonnées cartésiennes (x, z)

$$q_1 = \operatorname{atanh} \left[\frac{2ay}{a^2 + y^2 + z^2} \right] \quad (2.10)$$

$$q_2 = \operatorname{atan} \left[\frac{-2az}{a^2 - y^2 - z^2} \right] \quad (2.11)$$

q_1 est une coordonnée radiale définie sur $q_1 \in] - \infty ; +\infty[$, et q_2 est une coordonnée angulaire définie sur $q_2 \in [0 ; 2\pi]$. Notons également l'importance de a dans la définition de ces coordonnées.

2.1.2 Construction des coordonnées toroïdales

Les coordonnées toroïdales sont obtenues par rotation des coordonnées bipolaires autour de l'axe Oz . Cette rotation introduit une troisième coordonnée notée q_3 qui correspond à une coordonnée azimuthale. Les coordonnées toroïdales sont alors reliées aux

coordonnées cartésiennes par les équations suivantes [48, 81]:

$$x = a \frac{\sinh q_1 \cos q_3}{f(q_1, q_2)} \quad (2.12)$$

$$y = a \frac{\sinh q_1 \sin q_3}{f(q_1, q_2)} \quad (2.13)$$

$$z = a \frac{\sin q_2}{f(q_1, q_2)} \quad (2.14)$$

q_1 est alors une coordonnée radiale ($0 \leq q_1 < +\infty$). q_2 et q_3 sont des coordonnées angulaires ($0 \leq q_2 \leq 2\pi, 0 \leq q_3 \leq 2\pi$). a est le foyer du tore (Fig 2.4).

Inversement, nous pouvons exprimer q_1, q_2 et q_3 en fonction de x, y et z :

$$q_1 = \operatorname{atanh} \left[\frac{2a\sqrt{x^2 + y^2}}{a^2 + x^2 + y^2 + z^2} \right] \quad (2.15)$$

$$q_2 = \operatorname{atan} \left[-\frac{2az}{a^2 - x^2 - y^2 - z^2} \right] \quad (2.16)$$

$$q_3 = \operatorname{atan} \left[\frac{y}{x} \right] \quad (2.17)$$

En considérant la coordonnée q_1 constante ($q_1 = q_1^0$), l'équation obtenue à partir de la relation (2.15) est l'équation d'une surface sphérique centrée en $x = a \coth q_1^0, y = 0$ et $z = 0$, et de rayon $r = a \operatorname{csch} q_1^0$ (Fig 2.3) :

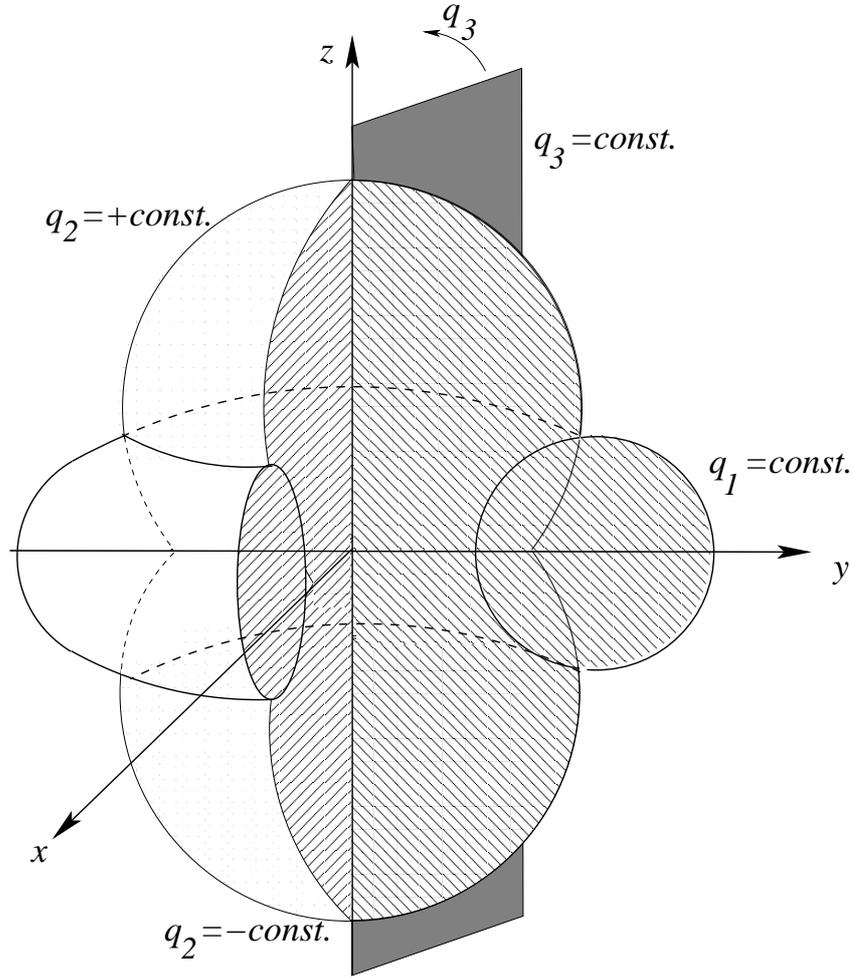
$$x^2 + y^2 + z^2 + a^2 = 2a\sqrt{x^2 + y^2} \coth q_1^0 \quad (2.18)$$

Cette équation permet de définir la surface d'un tore (Fig 2.2) par la seule coordonnée q_1 posée égale à une constante.

De même, en considérant q_2 constante, nous obtenons à partir de l'équation (2.16), l'égalité suivante :

$$x^2 + y^2 + (z - a \cotg q_2)^2 = \frac{a^2}{\sin^2 q_2} \quad (2.19)$$

Cette équation est l'équation d'une surface sphérique centrée en $x = 0, y = 0$ et $z = a \cotg q_2$, et de rayon $r = a \operatorname{csc} q_2$ (Fig 2.3).

FIG. 2.2 – Schéma des surfaces définies par q_1, q_2, q_3 constantes.

Sur la figure 2.3, nous avons représenté l'intersection des surfaces définies pour plusieurs valeurs de q_1 (eq. 2.18) et de q_2 (eq. 2.19) avec le plan $q_3 = 0$ (plan $0xz$). Lorsque q_1 prend des grandes valeurs, l'épaisseur du tore devient très faible ($d \rightarrow 0$) et le rayon moyen tend vers la valeur a . Inversement, si q_1^0 prend la valeur 0, l'épaisseur du tore devient très importante ($d \rightarrow \infty$) et le rayon intérieur est alors très petit $R_{in} \rightarrow 0$.

A partir de ce système de coordonnées, la surface d'un tore est simplement définie par la constante q_1^0 et de a . L'espace où $q_1 < q_1^0$ correspond au volume extérieur au tore alors que $q_1 > q_1^0$ définit l'intérieur du tore (Fig 2.4).

Les rayons intérieur R_{in} et extérieur R_{out} du tore défini par q_1^0 peuvent être exprimés

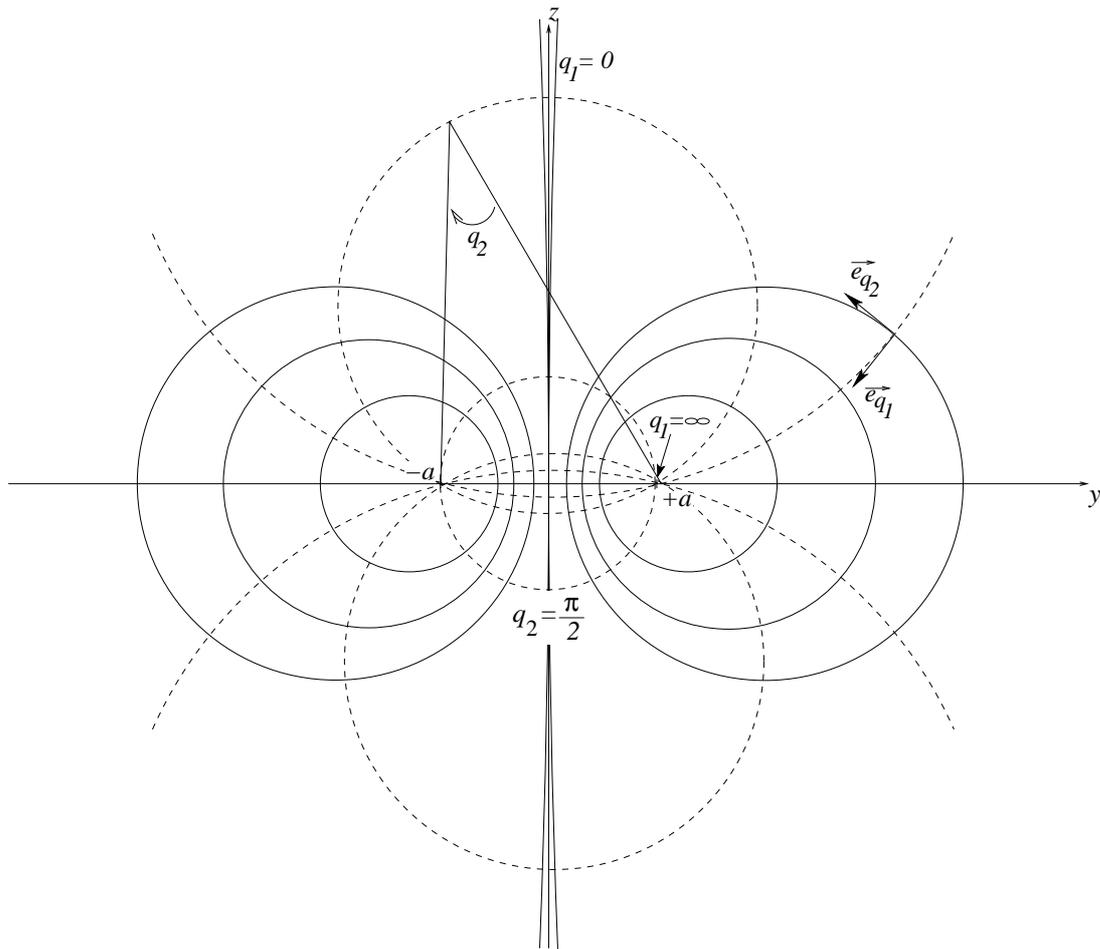


FIG. 2.3 – Les cercles en trait plein représentent l'intersection des surfaces pour plusieurs valeurs de q_1 avec le plan $q_3 = 0$ et les cercles en traits discontinus celles pour des valeurs de q_2 . Les vecteurs \mathbf{e}_{q_1} et \mathbf{e}_{q_2} sont deux des vecteurs unitaires "tournants" du système de coordonnées.

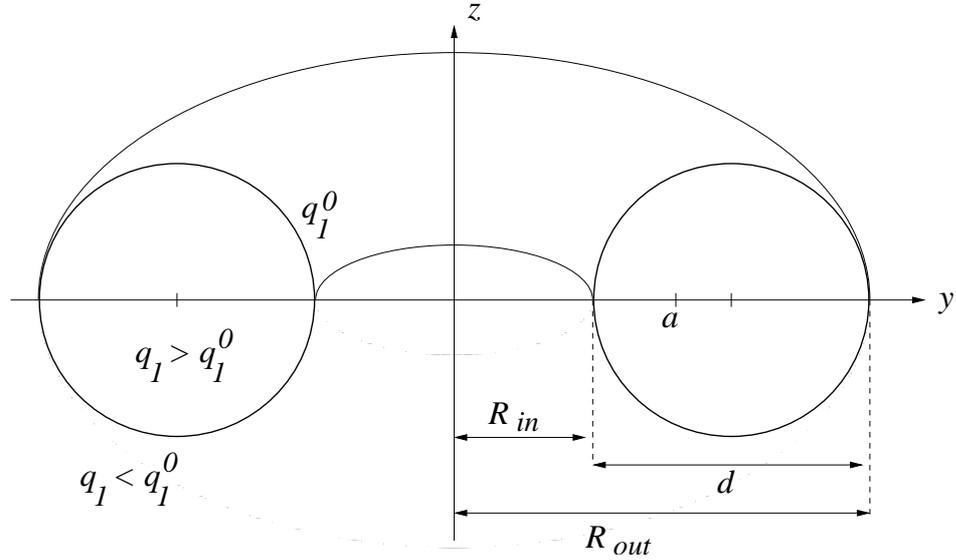


FIG. 2.4 – $q_1 = q_1^0 = \text{constante}$ et a définissent la surface d'un tore. L'épaisseur d , et les rayons intérieurs R_{in} et extérieurs R_{out} sont alors définis à partir de ces deux constantes.

en fonction de cette constante et du foyer a :

$$R_{in} = a \coth q_1^0 - a \operatorname{csch} q_1^0 \quad (2.20)$$

$$R_{out} = a \coth q_1^0 + a \operatorname{csch} q_1^0 \quad (2.21)$$

et inversement :

$$q_1^0 = \operatorname{arccosh} \left(\frac{R_{out} + R_{in}}{d} \right) \quad (2.22)$$

$$a = \frac{R_{out} + R_{in}}{2 \coth q_1^0} \quad (2.23)$$

où d représente l'épaisseur du tore :

$$d = R_{out} - R_{in} \quad (2.24)$$

Les relations (2.22) et (2.23) montrent que la coordonnée q_1 est sans dimension. L'unité de longueur est contenue dans la constante a .

Le rapport d/R_{in} , ou facteur de forme, est sans unité. Donc des tores qui ont des rapports d'épaisseur et de rayon intérieur égaux, mais qui ont des tailles différentes, seront caractérisés par la même valeur de q_1^0 .

2.1.3 Facteurs d'échelle

Les facteurs d'échelles sont définis par la formule générale suivante [52]:

$$h_i^2 = g_{ii} = \left[\frac{\partial x}{\partial q_i} \right]^2 + \left[\frac{\partial y}{\partial q_i} \right]^2 + \left[\frac{\partial z}{\partial q_i} \right]^2 \quad (2.25)$$

La quantité h_i est le facteur d'échelle pour la coordonnées q_i . Une variation dq_i de cette coordonnée correspond à une longueur de déplacement $h_i dq_i$.

Par rapport aux coordonnées cartésiennes, nous trouvons pour les facteurs d'échelles des coordonnées toroïdales :

$$h_{q_1} = h_{q_2} = \frac{a}{f(q_1, q_2)} \quad (2.26)$$

$$h_{q_3} = \frac{a \sinh q_1}{f(q_1, q_2)} \quad (2.27)$$

2.1.4 Vecteurs unitaires

Les vecteurs unitaires en coordonnées toroïdales sont calculés à partir de x, y et z et par les relations suivantes :

$$\mathbf{e}_{q_n} = \sum_m \gamma_{m n} \mathbf{e}_{x_m} \quad (2.28)$$

$$\text{avec } \gamma_{m n} = \frac{1}{h_{q_n}} \frac{\partial x_m}{\partial q_n} \quad (2.29)$$

après calculs, nous trouvons :

$$\mathbf{e}_{q_1} = \kappa \mathbf{q} + \beta \mathbf{e}_z \quad (2.30)$$

$$\mathbf{e}_{q_2} = \beta \mathbf{q} - \kappa \mathbf{e}_z \quad (2.31)$$

$$\mathbf{e}_{q_3} = -\sin q_3 \mathbf{e}_x + \cos q_3 \mathbf{e}_y \quad (2.32)$$

où le vecteur \mathbf{q} est défini par :

$$\mathbf{q} = \cos q_3 \mathbf{e}_x + \sin q_3 \mathbf{e}_y \quad (2.33)$$

et les constantes κ , β , et γ par :

$$\kappa = \frac{1 - \cosh q_1 \cos q_2}{f(q_1, q_2)} \quad (2.34)$$

$$\beta = -\gamma \sinh q_1 \quad (2.35)$$

$$\gamma = \frac{\sin q_2}{f(q_1, q_2)} \quad (2.36)$$

Nous pouvons de même exprimer les vecteurs cartésiens \mathbf{e}_x , \mathbf{e}_y , \mathbf{e}_z en fonctions des vecteurs unitaires toroïdaux.

$$\mathbf{e}_x = \kappa \cos q_3 \mathbf{e}_{q_1} + \beta \cos q_3 \mathbf{e}_{q_2} - \sin q_3 \mathbf{e}_{q_3} \quad (2.37)$$

$$\mathbf{e}_y = \kappa \sin q_3 \mathbf{e}_{q_1} + \beta \sin q_3 \mathbf{e}_{q_2} + \cos q_3 \mathbf{e}_{q_3} \quad (2.38)$$

$$\mathbf{e}_z = \beta \mathbf{e}_{q_1} - \kappa \mathbf{e}_{q_2} \quad (2.39)$$

2.1.5 Vecteur position

En coordonnées cartésiennes, le vecteur position \mathbf{r} a pour expression :

$$\mathbf{r} = x \mathbf{e}_x + y \mathbf{e}_y + z \mathbf{e}_z \quad (2.40)$$

A partir des expressions en coordonnées toroïdales des variables x , y , z et des vecteurs unitaires cartésiens, \mathbf{r} s'exprime sous la forme :

$$\mathbf{r} = -\frac{a}{f(q_1, q_2)} [\cos q_2 \sinh q_1 \mathbf{e}_{q_1} + \cosh q_1 \sin q_2 \mathbf{e}_{q_2}] \quad (2.41)$$

Sa norme a pour expression :

$$r = a \sqrt{\frac{\cosh q_1 + \cos q_2}{\cosh q_1 - \cos q_2}} \quad (2.42)$$

2.1.6 Gradient et laplacien en coordonnées toroïdales

Le gradient d'un champ scalaire Φ s'exprime sous sa forme générale par [52] :

$$\nabla \Phi = \sum_n \mathbf{e}_{q_n} \frac{1}{h_n} \frac{\partial \Phi}{\partial q_n} \quad (2.43)$$

Les facteurs d'échelle et les vecteurs unitaires relatifs aux coordonnées toroïdales ont été trouvés précédemment. Nous pouvons alors écrire le gradient dans le système de coordonnées toroïdales :

$$\nabla \Phi = \frac{1}{h_{q_1}} \left[\frac{\partial \Phi}{\partial q_1} \mathbf{e}_{q_1} + \frac{\partial \Phi}{\partial q_2} \mathbf{e}_{q_2} + \frac{1}{\sinh q_1} \frac{\partial \Phi}{\partial q_3} \mathbf{e}_{q_3} \right] \quad (2.44)$$

Le Laplacien est sous sa forme générale [48] :

$$\nabla^2 \Phi = \frac{1}{h_{q_1} h_{q_2} h_{q_3}} \left[\frac{\partial}{\partial q_1} \left(\frac{h_{q_2} h_{q_3}}{h_{q_1}} \frac{\partial \Phi}{\partial q_1} \right) + \frac{\partial}{\partial q_2} \left(\frac{h_{q_1} h_{q_3}}{h_{q_2}} \frac{\partial \Phi}{\partial q_2} \right) + \frac{\partial}{\partial q_3} \left(\frac{h_{q_1} h_{q_2}}{h_{q_3}} \frac{\partial \Phi}{\partial q_3} \right) \right] \quad (2.45)$$

ce qui devient en coordonnées toroïdales :

$$\nabla^2\Phi = \frac{1}{h_{q_1}^3} \left[\frac{1}{\sinh q_1} \frac{\partial}{\partial q_1} \left(h_{q_1} \sinh q_1 \frac{\partial\Phi}{\partial q_1} \right) + \frac{\partial}{\partial q_2} \left(h_{q_2} \frac{\partial\Phi}{\partial q_2} \right) + \frac{h_{q_1}}{\sinh q_1^2} \frac{\partial^2\Phi}{\partial q_3^2} \right] \quad (2.46)$$

2.2 Solutions mathématiques de l'équation de Laplace en coordonnées toroïdales

Nous voulons étudier un tore diélectrique aux fréquences optiques. La longueur d'onde λ est donc comprise entre 400 nm et 800 nm. Le diamètre des tores que nous allons considérer devra donc être significativement inférieur à 400 nm pour que l'approximation non retardée reste pertinente :

$$D = 2(d + R_{in}) \ll 400 \text{ nm} \quad (2.47)$$

2.2.1 Séparation de variables

L'équation de Laplace $\nabla^2\Phi(\mathbf{r}) = 0$ est une équation différentielle avec certaines conditions aux limites. La résolution de cette équation a fait l'objet d'études mathématiques considérables. Dans le cas d'objets de formes très compliqués, il n'existe pas de méthode analytique simple. On ne peut résoudre ce problème qu'approximativement, en utilisant des méthodes numériques.

Toutefois, il y a quelques problèmes pour lesquels l'équation (1.83) peut être résolue directement. Une résolution analytique nécessite de pouvoir écrire le potentiel sous forme de produit de fonctions :

$$\Phi(\mathbf{r}) = F_1(x_1) F_2(x_2) F_3(x_3) \quad (2.48)$$

où (x_1, x_2, x_3) est un système de coordonnées. Le potentiel est séparé en trois fonctions, chacune dépendante d'une seule coordonnée. L'équation de Laplace est exprimée dans ce système de coordonnées par :

$$\frac{1}{h_{x_1}h_{x_2}h_{x_3}} \left[\frac{\partial}{\partial x_1} \left(\frac{h_{x_2}h_{x_3}}{h_{x_1}} \frac{\partial\Phi}{\partial x_1} \right) + \frac{\partial}{\partial x_2} \left(\frac{h_{x_1}h_{x_3}}{h_{x_2}} \frac{\partial\Phi}{\partial x_2} \right) + \frac{\partial}{\partial x_3} \left(\frac{h_{x_1}h_{x_2}}{h_{x_3}} \frac{\partial\Phi}{\partial x_3} \right) \right] F_1(x_1)F_2(x_2)F_3(x_3) = 0 \quad (2.49)$$

Systèmes de coordonnées	Fonctions correspondant aux solutions générales des équations aux dérivées ordinaires issues de la séparation de variables
Cartésien	Fonctions exponentielles, circulaires, fonctions hyperboliques
Cylindrique	Fonctions de Bessel, circulaires
Conique	Harmoniques elliptiques
Elliptique	Harmoniques elliptiques
Cylindrique elliptique	Fonctions de Mathieu, circulaires
Coordonnées sphéroïdales aplaties (oblate)	Polynômes de Legendre, fonctions circulaires
Parabolique	Fonctions de Bessel, fonctions circulaires
Parabolique cylindrique	Fonctions paraboliques cylindriques, fonctions de Bessel, fonctions circulaires
Paraboloidal	Fonctions circulaires
Coordonnées sphéroïdales allongées (prolate)	Polynômes de Legendre, fonctions circulaires
Sphérique	Polynômes de Legendre, fonctions circulaires

TAB. 2.1 – *Systèmes de coordonnées séparables dans l'équation de Helmholtz scalaire. Les fonctions "circulaires" désignent les fonction sinus et cosinus.*

Si cette dernière expression peut être décomposée en trois équations différentielles ordinaires, l'équation de Laplace est alors séparable dans ce système de coordonnées, et une solution analytique peut être trouvée.

En pratique, il existe onze systèmes de coordonnées en trois dimensions qui permettent la séparation de l'équation de Helmholtz scalaire et de Laplace (voir tableau 2.2.1).

En plus de ces onze systèmes, la séparation de variables est possible pour l'équation de Laplace dans deux autres systèmes, en introduisant un facteur multiplicatif. Dans ces systèmes, la forme séparée du potentiel est :

$$\Phi(\mathbf{r}) = \frac{F_1(x_1)F_2(x_2)F_3(x_3)}{R(x_1, x_2, x_3)} \quad (2.50)$$

Ces deux autres systèmes sont les systèmes de coordonnées bisphériques et toroïdales.

2.2.2 Solutions générales des équations différentielles ordinaires

Dans le système de coordonnées toroïdales, il faut poser [48]:

$$\Phi(q_1, q_2, q_3) = \sqrt{f(q_1, q_2)} F(q_1, q_2, q_3) \quad (2.51)$$

où $F(q_1, q_2, q_3) = U(q_1)V(q_2)\zeta(q_3)$ et $f(q_1, q_2)$ est définie par la relation (2.9).

En introduisant cette expression dans celle du gradient exprimé en coordonnées toroïdales (eq. 2.44), l'équation de Laplace s'exprime alors sous la forme :

$$\begin{aligned} \frac{1}{U(q_1) \sinh q_1} \frac{\partial}{\partial q_1} \left(\sinh q_2 \frac{\partial U(q_1)}{\partial q_1} \right) + \frac{1}{V(q_2)} \frac{\partial^2 V(q_2)}{\partial q_2^2} \\ + \frac{1}{\zeta(q_3) \sinh^2 q_1} \frac{\partial^2 \zeta(q_3)}{\partial q_3^2} + \frac{1}{4} = 0 \end{aligned} \quad (2.52)$$

La fonction $\zeta(q_3)$ vérifie l'égalité suivante :

$$\frac{\zeta''(q_3)}{\zeta(q_3)} = -m^2 \quad (2.53)$$

où m est un nombre entier. La solution de cette équation différentielle est triviale :

$$\zeta_m(q_3) = e^{imq_3} \text{ avec } m \text{ entier } \geq 0 \quad (2.54)$$

Nous pouvons donc réécrire l'équation de Laplace comme suit :

$$\frac{U''(q_1)}{U(q_1)} + \frac{V''(q_2)}{V(q_2)} - \frac{m^2}{\sinh^2(q_1)} + \coth(q_1) \frac{U'(q_1)}{U(q_1)} + \frac{1}{4} = 0 \quad (2.55)$$

La fonction $V(q_2)$ alors séparée, vérifie :

$$\frac{V''(q_2)}{V(q_2)} = -n^2 \quad (2.56)$$

où n est aussi un entier. La solution est également très simple :

$$V_n(q_2) = e^{inq_2} \text{ avec } m \text{ entier } \geq 0 \quad (2.57)$$

En remplaçant les fonctions $\zeta(q_3)$ et $V(q_2)$ par leurs solutions respectives dans l'équation de Laplace (2.53), il ne reste que la dépendance en q_1 :

$$\frac{U''(q_1)}{U(q_1)} + \coth(q_1) \frac{U'(q_1)}{U(q_1)} - \left[\frac{m^2}{\sinh^2(q_1)} + \left(n^2 - \frac{1}{4} \right) \right] = 0 \quad (2.58)$$

En multipliant cette dernière équation par $U(q_1)$, nous aboutissons à une équation différentielle de Legendre :

$$\frac{1}{\sinh(q_1)} \frac{\partial}{\partial q_1} \left(\sinh(q_1) \frac{\partial U(q_1)}{\partial q_1} \right) - \left[\frac{m^2}{\sinh^2(q_1)} + \left(n^2 - \frac{1}{4} \right) \right] U(q_1) = 0 \quad (2.59)$$

La solution de l'équation (2.59) est une combinaison linéaire des fonctions de Legendre de 1ère et 2nde espèce d'indices demi-entiers [50, 80]. Elles sont généralement notées $P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ et $Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1)(\cosh q_1)$.

La solution générale de l'équation de Laplace s'écrit alors sous la forme [48, 82] :

$$\begin{aligned} \Phi(q_1, q_2, q_3) &= \sqrt{f(q_1, q_2)} \\ &\sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \left[A_n^m P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) + B_n^m Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1)(\cosh q_1) \right] e^{imq_2} e^{imq_3} \end{aligned} \quad (2.60)$$

où A_n^m et B_n^m sont des constantes. La suite de ce chapitre est consacré à ces fonctions de Legendre d'indices demi-entiers. Nous allons nous intéresser à leurs propriétés, ainsi qu'à leur évaluation numérique.

2.3 Fonctions de Legendre d'indices demi-entiers

Les fonctions de Legendre d'indices demi-entiers sont plus communément appelées fonctions toroïdales ou toriques, ou encore harmoniques toriques. Elles sont exprimées sous forme intégrale par [50]:

$$P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) = \frac{\Gamma(n+m+\frac{1}{2})(\sinh q_1)m}{\Gamma(n-m+\frac{1}{2})2^m\sqrt{\pi}(m+\frac{1}{2})} \int_0^\pi \frac{(\sin \varphi)^{2m} d\varphi}{(\cosh q_1 + \cos \varphi \sinh q_1)^{n+m+\frac{1}{2}}} \quad (2.61)$$

$$P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) = \frac{(-1)^m \Gamma(n+\frac{1}{2})}{\Gamma(n-m+\frac{1}{2})} \int_0^\infty \frac{\cosh mt dt}{(\cosh q_1 + \cos t \sinh q_1)^{n+\frac{1}{2}}} \quad (2.62)$$

et où, la fonction Γ est :

$$\Gamma(n) = (n-1)!$$

Leurs expressions sont très proches de celles des fonctions de Legendre d'indices entiers. Ces dernières ont été souvent discutées dans la littérature et de nombreux algorithmes ont été développés [83, 84, 85, 86]. Toutefois, l'évaluation des fonctions toroïdales est plus délicate. Le calcul numérique direct des intégrales comprises dans les équations (2.61) et (2.62) diverge très rapidement.

Gaustschi proposa un premier algorithme en 1965 [84], relativement stable, mais très lent et seulement valide pour les faibles degrés n et ordres m . Récemment, A. Gil et S. Segura proposèrent une méthode [87] permettant de calculer de manière stable et précise (quadruple précision possible) les fonctions $P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ et $P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ pour toutes valeurs de n et m . Basée sur une méthode proche de celle de Gautschi, leur approche permet un calcul plus précis et valide pour une grande plage de paramètres.

Nous pouvons noter également une méthode originale et simple développée dans la référence [88]. Malheureusement, cette méthode ne permet de calculer que les fonctions $P_{n\pm\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ (et non les fonctions $Q_{n\pm\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$) et converge très difficilement pour des grandes valeurs de $\cosh q_1$.

2.3.1 Relations de récurrence et évaluation numérique

L'algorithme de calcul des fonctions toroïdales que nous avons utilisé, est basé sur les relations de récurrences que vérifient toutes les fonctions de Legendre ($P_\nu^m(\vartheta)$ et $Q_\nu^m(\vartheta)$) [50] :

$$(\nu - m + 1)P_{\nu+1}^m(\vartheta) - (2\nu + 1)xP_\nu^m(\vartheta) + (\nu + m)P_{\nu-1}^m(\vartheta) = 0 \quad (2.63)$$

$$P_\nu^{m+1}(\vartheta) + \frac{2mx}{(\vartheta^2 - 1)^{1/2}}P_\nu^m(\vartheta) - (\nu - m + 1)(\nu + m)P_\nu^{m-1}(\vartheta) = 0 \quad (2.64)$$

Considérons dans un premier temps que le degré ν soit un nombre entier et que l'ordre m soit un nombre entier positif. Les mêmes relations de récurrence sont applicables aux fonctions $Q_\nu^m(\vartheta)$.

Les fonctions de Legendre vérifient donc une relation de récurrence à trois termes :

$$y_{k+1} + a_k y_k + b_k y_{k-1} = 0 \quad (2.65)$$

Cette relation n'admet une solution que si il existe deux solutions linéaires indépendantes y_k^\uparrow et y_k^\downarrow [89] telles que :

$$\lim_{k \rightarrow \infty} \frac{y_k^\downarrow}{y_k^\uparrow} = 0 \quad (2.66)$$

La solution y_k^\downarrow est appelée solution dominée et est unique. y_k^\uparrow est appelée solution dominante [90].

La relation de récurrence peut être alors appliquée vers l'arrière pour évaluer la solution dominée. La connaissance de y_k^\downarrow et de y_{k+1}^\downarrow permet alors de calculer y_{k-1}^\downarrow numériquement. L'utilisation de la relation de récurrence vers l'avant pour trouver une solution minimale entraîne une aberration puisque une simple erreur d'arrondi introduira une composante dominante, faisant diverger le calcul [91].

De la même manière, le calcul d'une solution dominante ne peut se faire que de l'avant par récurrence. y_k^\uparrow et y_{k-1}^\uparrow permettent alors de calculer y_{k+1}^\uparrow .

Dans le cas des fonctions de Legendre, il est facile à vérifier que les fonction $Q_\nu^m(\vartheta)$ sont des solutions dominées à l'équation de récurrence sur le degré n (eq. 2.63) et que les $P_\nu^m(\vartheta)$ sont solutions dominantes [89]. Pour la récurrence sur m (eq. 2.64), $P_\nu^m(\vartheta)$ sont solutions dominées et les fonctions $Q_\nu^m(\vartheta)$ sont des solutions dominantes.

L'application du théorème de Pincherle [92] sur les relations (eq. 2.63) et (eq. 2.64) réécrites sous forme de fractions continues :

$$\frac{Q_\nu^m(\vartheta)}{Q_{\nu-1}^m(\vartheta)} = \frac{1}{(2\nu+1)/(\nu+m).x - (\nu-m+1)/(\nu+m).Q_{\nu+1}^m(\vartheta)/Q_\nu^m(\vartheta)} \quad (2.67)$$

$$\frac{P_\nu^m(\vartheta)}{P_{\nu-1}^m(\vartheta)} = \frac{(\nu-m+1)(\nu+m)}{2mx/\sqrt{\vartheta^2-1} + P_{\nu+1}^m(\vartheta)/P_\nu^m(\vartheta)} \quad (2.68)$$

démontre leur convergence pour $x > 1$ [93].

L'utilisation de ces relations de récurrence rend l'évaluation des fonctions de Legendre d'indice entier ($P_\nu^m(\vartheta)$) simple. Effectivement, pour cette catégorie de fonctions, il existe des expressions pour $P_N^m(\vartheta)$ et $P_{N+1}^m(\vartheta)$:

$$P_N^m(\vartheta) = (-1)^m (2m-1)!! (1-\vartheta^2)^{m/2}$$

$$P_{N+1}^m(\vartheta) = x(2m+1)P_N^m(\vartheta)$$

Ces deux équations servent alors de point de départ à la relation de récurrence (2.63). $P_n^m(\vartheta)$ étant une solution dominante, le calcul des fonctions $P_n^m(\vartheta)$ pour tout degré $n = 0 \dots N$ et m fixé, est alors immédiat par récurrence vers l'arrière [91].

Pour les harmoniques toriques, le degré ν n'est pas entier ($\nu = n - 1/2$, $n = 0, 1, 2, \dots$) et l'argument $\vartheta = \cosh q_1$ est positif et supérieur à 1.

Pour ces fonctions, la plus grosse difficulté comparée à l'évaluation des fonctions à indice entier, vient du fait que des expressions simples ne peuvent être trouvées que pour $Q_{-\frac{1}{2}}^0(\vartheta)$ et $Q_{-\frac{1}{2}}^1(\vartheta)$:

$$Q_{-\frac{1}{2}}^0(\vartheta) = \sqrt{\frac{2}{\vartheta+1}} K\left(\frac{2}{\vartheta+1}\right) \quad (2.69)$$

$$Q_{-\frac{1}{2}}^1(\vartheta) = -\frac{E\left(\frac{2}{\vartheta+1}\right)}{\sqrt{2(\vartheta+1)}} \quad (2.70)$$

Les fonctions E et K sont des intégrales elliptiques et sont évaluées grâce à l'algorithme de Carlson [94]. Comme nous l'avons vu précédemment, les fonctions Q sont solutions dominantes sur la récurrence sur m . Il est alors possible de calculer $Q_{-\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$. Ces fonctions sont solutions minimales pour la récurrence sur n . Les fonctions $Q_{-\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$ ne peuvent être évaluées.

A ce stade, l'absence de point de départ pour une relation de récurrence stable pour les fonctions $P_{n-\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$ semble bloquer le calcul. Toutefois, il est possible d'écrire de nouvelles relations en introduisant le Wronskien relatif entre les fonctions $P_{\nu}^m(\vartheta)$ et $Q_{\nu}^m(\vartheta)$:

$$W\{P_{\nu}^m(\vartheta), Q_{\nu}^m(\vartheta)\} = \frac{\Gamma(\nu+m)}{\Gamma(\nu-m+1)} \frac{(-1)^m}{1-\vartheta^2} \quad (2.71)$$

En combinant le Wronskien avec les relations de récurrences, deux nouvelles relations entre deux degrés ν (eq. 2.72) et deux ordres m (eq. 2.73) consécutifs apparaissent :

$$P_{\nu}^m(\vartheta)Q_{\nu-1}^m(\vartheta) - P_{\nu-1}^m(\vartheta)Q_{\nu}^m(\vartheta) = \frac{\Gamma(\nu+m)}{\Gamma(\nu-m+1)}(-1)^m \quad (2.72)$$

$$P_{\nu}^m(\vartheta)Q_{\nu}^{m+1}(\vartheta) - P_{\nu}^{m+1}(\vartheta)Q_{\nu}^m(\vartheta) = \frac{\Gamma(\nu+m+1)}{\Gamma(\nu-m+1)} \frac{(-1)^m}{\sqrt{\vartheta^2-1}} \quad (2.73)$$

L'utilisation complémentaire des deux fractions continues (2.68) et (2.68), et des relations dérivées du Wronskien rendent alors possible le calcul des fonction toroïdales.

L'algorithme peut alors être résumé sous la forme suivante :

- * Calcul des fonctions $Q_{-\frac{1}{2}}^0(\vartheta)$ et $Q_{-\frac{1}{2}}^1(\vartheta)$.
- * Calcul des fonctions $Q_{-\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$ $m = 0, 1, \dots, M$ par récurrence vers l'avant.

- * Evaluation des $P_{-\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$: La première étape consiste à calculer $P_{-\frac{1}{2}}^M(\vartheta)/P_{-\frac{1}{2}}^{M-1}(\vartheta)$ en utilisant la fraction continue (2.68) avec $\nu = -1/2$:

$$H_p = \frac{P_{-\frac{1}{2}}^M(\vartheta)}{P_{-\frac{1}{2}}^{M-1}(\vartheta)} = \frac{-(M+1/2)^2}{2M\vartheta/\sqrt{\vartheta^2-1} - \frac{(M+1/2)^2}{2(M+1)\vartheta/\sqrt{\vartheta^2-1} - \frac{(M+3/2)^2}{2M\vartheta/\sqrt{\vartheta^2-1} - \dots}} \quad (2.74)$$

Cette fraction converge rapidement. Elle est combinée avec l'équation (2.73) ce qui donne :

$$P_{-\frac{1}{2}}^M(\vartheta) = -\frac{\Gamma(M-1/2)^2}{\pi} \frac{1}{\sqrt{\vartheta^2-1}} \frac{1}{Q_{-\frac{1}{2}}^M(\vartheta)/H_p - Q_{-\frac{1}{2}}^{M-1}(\vartheta)} \quad (2.75)$$

Les autres fonctions $P_{-\frac{1}{2}}^{m=0,\dots,M-1}(\vartheta)$ sont obtenues par récurrence vers l'arrière.

A ce stade, nous avons généré les fonctions $\{P_{-\frac{1}{2}}^m(\vartheta), Q_{-\frac{1}{2}}^m(\vartheta), 0 \leq m \leq M\}$.

- * Evaluation des $P_{+\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$: Nous allons procéder de la même manière que l'étape précédente : dans un premier temps, nous calculons la fraction continue :

$$H_q = \frac{Q_{+\frac{1}{2}}^M(\vartheta)}{Q_{+\frac{1}{2}}^{M-1}(\vartheta)} \quad (2.76)$$

et qui combinée avec la relation (2.68) donne :

$$P_{+\frac{1}{2}}^M(\vartheta) = P_{-\frac{1}{2}}^M(\vartheta)H_q + \frac{1}{Q_{-\frac{1}{2}}^M(\vartheta)} \frac{\Gamma(3/2+M)}{\Gamma(3/2-M)} \frac{(-1)^M}{(M+1/2)} \quad (2.77)$$

La relation (2.64) permet de calculer tous les $P_{\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$, $m = 0, 1, \dots, M$.

- * Evaluation des $P_{n-\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$: Nous connaissons maintenant $P_{-\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$ et $P_{n+\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$. Par la relation (2.63), nous obtenons $P_{n-\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$ $0 \leq m \leq M$, $0 \leq n \leq N$. Toutes les fonctions P ont été évaluées.
- * Evaluation de $Q_{n-\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$: A partir de $P_{N+\frac{1}{2}}^0(\vartheta)$ et de $P_{N-\frac{1}{2}}^0(\vartheta)$, nous obtenons $Q_{N+\frac{1}{2}}^0(\vartheta)$ et de $Q_{N-\frac{1}{2}}^0(\vartheta)$ en utilisant une fraction continue et la relation (2.72).
- * Par la même méthode, nous avons $Q_{N+\frac{1}{2}}^1(\vartheta)$ et $Q_{N-\frac{1}{2}}^1(\vartheta)$.

- * De $Q_{N\pm\frac{1}{2}}^0(\vartheta)$ et $Q_{N\pm\frac{1}{2}}^1(\vartheta)$, nous obtenons $Q_{N\pm\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$ $0 \leq m \leq M$ par récurrence.
- * Pour finir, une récurrence sur n à partir de $Q_{N+\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$ et $Q_{N-\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$, nous permet d'évaluer le reste des fonctions $Q_{m-\frac{1}{2}}^m(\vartheta)$ $0 \leq m \leq M$, $0 \leq n \leq N$.

Sur les figures 2.5 et 2.6, nous avons tracé les courbes des fonctions $P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ et $Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1)$ ($\cosh q_1$) pour des ordres $m = 0,1,2$ et les degrés $n = 0,1,2$.

2.3.2 Orthogonalité

Deux fonctions $f(\vartheta)$ et $g(\vartheta)$ sont dites orthogonales sur l'intervalle $a \leq \vartheta \leq b$ avec un facteur de poids $w(\vartheta)$ si :

$$\int_a^b f(\vartheta)g(\vartheta)w(\vartheta)d\vartheta = 0 \quad (2.78)$$

Il est possible de développer une relation d'orthogonalité de la même manière que pour les fonctions de Legendre associées [95] :

$$\int_{-1}^1 P_\nu^m(\vartheta)P_\nu^k(\vartheta)(1-\vartheta^2)^{-1}d\vartheta = \frac{(\nu+m)!}{m(\nu-m)!}\delta_{m,k} \quad (2.79)$$

Cette expression reste identique par échange des fonctions $P_\nu^k(\vartheta)$ par les fonctions $Q_\nu^k(\vartheta)$ [50].

2.3.3 Dérivées

En combinant l'équation de Legendre (2.59) et les relations de récurrence, on montre que la dérivée d'une fonction de Legendre d'indices demi-entiers s'écrit :

$$\frac{d}{dq_1}T_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) = \left(n - \frac{1}{2}\right) \frac{\cosh q_1}{\sinh q_1} T_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) - \frac{n-m-1/2}{\sinh q_1} T_{n-1-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) \quad (2.80)$$

où $T_{n-1-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ représente soit $Q_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ soit $P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$. La relation de récurrence (2.64) appliquée à $m = 0$ donne :

$$T_{n-1/2}^{m=1}(\cosh q_1) = \frac{n-1/2}{\sinh q_1} [\cosh q_1 T_{n-1/2}^{m=0}(\cosh q_1) - T_{n-3/2}^{m=0}(\cosh q_1)] \quad (2.81)$$

Si cette dernière équation est appliquée à la relation sur les dérivées, on trouve :

$$\frac{d}{dq_1}T_{n-1/2}^{m=0}(\cosh q_1) = T_{n-1/2}^{m=1}(\cosh q_1) \quad (2.82)$$

2.3.4 Autres formules analytiques

Il existe peu de formules analytiques des fonctions toriques excepté les expressions (2.70) et (2.70) qui sont le point de départ de l'algorithme. On peut également noter les relations suivantes :

$$\sqrt{2} Q_{n-1/2}^{m=0}(\cosh q_1) = \int_0^\pi \frac{\cos(nq_2)}{\sqrt{f(q_1, q_2)}} dq_2 \quad (2.83)$$

$$\frac{1}{\sqrt{\cosh q_1 - \cos q_2}} = \frac{\sqrt{2}}{\pi} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} Q_{n-1/2}^{m=0} \cos(nq_2) \quad (2.84)$$

2.3.5 Degrés négatifs

La définition des fonctions toroïdales montre que le degré n peut être un nombre entier négatif. Si $n > m$, nous pouvons écrire l'égalité suivante :

$$P_{-n-1/2}^m(\cosh q_1) = P_{n-1/2}^m(\cosh q_1) \quad (2.85)$$

$$Q_{-n-1/2}^m(\cosh q_1) = Q_{n-1/2}^m(\cosh q_1) \quad (2.86)$$

La seule exception à cette règle se produit pour $m = 1$ et $n = 1$. Pour cet ordre et ce degré, nous pouvons écrire :

$$Q_{-1-1/2}^{m=1}(\cosh q_1) = -Q_{1-1/2}^{m=1}(\cosh q_1) \quad (2.87)$$

2.3.6 Comportements asymptotiques

Les formes asymptotiques simples sont essentiellement obtenues pour $m = 0$ à partir des relations (2.61) et (2.62) :

$$\lim_{q_1 \rightarrow 0} P_{n-1/2}^{m=0}(\cosh q_1) = 1 \quad (2.88)$$

$$\lim_{q_1 \rightarrow \infty} Q_{n-1/2}^{m=0}(\cosh q_1) = 0 \quad (2.89)$$

Les grandes valeurs de n permettent aussi de dégager les expressions suivantes :

$$\lim_{n \rightarrow \infty} P_{n-1/2}^{m=0}(\cosh q_1) = \frac{e^{nq_1}}{[2\pi(n+1/2) \sinh q_1]^{1/2}} \quad (2.90)$$

$$\lim_{n \rightarrow \infty} Q_{n-1/2}^{m=0}(\cosh q_1) = \frac{\pi^{1/2} e^{-nq_1}}{[2(n-1/2) \sinh q_1]^{1/2}} \quad (2.91)$$

Les autres comportements asymptotiques sont déduits de l'évaluation numérique des fonctions toroïdales :

$$\lim_{q_1 \rightarrow \infty} P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) = \infty \quad (2.92)$$

$$\lim_{q_1 \rightarrow 0} Q_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) = \infty \quad (2.93)$$

2.4 Coordonnées cartésiennes et fonctions toroïdales

Nous avons vu dans le premier chapitre qu'il est nécessaire de connaître le développement de z sur les fonctions de Legendre (eq. 1.143), pour mener à bien la résolution du problème d'une nanosphère placée dans un champ uniforme. En vue de l'étude de la diffusion de la lumière par un tore, nous allons, dans cette section, chercher à exprimer les coordonnées cartésiennes x , y et z sur les fonctions de Legendre à indices demi-entiers.

Commençons par chercher l'expression de z . Pour cela, nous allons partir de l'une des rares expressions analytiques des fonctions $Q_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ [48] :

$$\frac{1}{\sqrt{f(q_1, q_2)}} = \frac{\sqrt{2}}{\pi} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} Q_{n-\frac{1}{2}}^{m=0}(\cosh q_1) \cos(nq_2) \quad (2.94)$$

En dérivant cette égalité par rapport à q_2 , la coordonnée z apparaît :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dq_2} \left(\frac{1}{\sqrt{f(q_1, q_2)}} \right) &= -\frac{\sin q_2}{2f(q_1, q_2)^{3/2}} \\ &= -\frac{z}{2af(q_1, q_2)^{1/2}} \end{aligned}$$

car $z = a \frac{\sin q_2}{f(q_1, q_2)}$. La coordonnée z possède alors pour développement :

$$z = \frac{2\sqrt{2}a}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} n Q_{n-\frac{1}{2}}^{m=0}(\cosh q_1) \sin(nq_2) \quad (2.95)$$

Grâce aux égalités des fonctions toroïdales pour des indices n négatifs, nous pouvons réduire la somme sur n . En utilisant la relation (2.86), nous obtenons :

$$z = \frac{4\sqrt{2}a}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=1}^{+\infty} n Q_{n-\frac{1}{2}}^{m=0}(\cosh q_1) \sin(nq_2) \quad (2.96)$$

Cherchons maintenant à obtenir un développement de x et y . Le point de départ de notre démonstration est le même que pour la coordonnée z , mais nous allons dériver l'égalité (2.94) par rapport à q_1 . Cette dérivation fait apparaître la coordonnée x :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dq_1} \left(\frac{1}{f(q_1, q_2)} \right) &= -\frac{\sinh q_1}{2f(q_1, q_2)^{3/2}} \\ &= -\frac{x}{2af(q_1, q_2)^{1/2} \cos q_3} \end{aligned}$$

car $x = a \frac{\sinh q_1 \cos q_3}{f(q_1, q_2)}$. Nous obtenons alors :

$$x = -\frac{2\sqrt{2}a}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{d}{dq_1} Q_{n-1/2}^{m=0}(\cosh q_1) \cos(nq_2) \cos q_3 \quad (2.97)$$

L'application de la relation (2.82) sur la dérivée des fonctions $Q_{n-1/2}^{m=0}(\cosh q_1)$ conduit à l'égalité suivante :

$$x = -\frac{2\sqrt{2}a}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} Q_{n-1/2}^{m=1}(\cosh q_1) \cos(nq_2) \cos q_3 \quad (2.98)$$

De même que pour la coordonnée z , les égalités sur les degrés négatifs permettent d'éliminer la somme sur les n négatifs :

$$x = -\frac{2\sqrt{2}a}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=0}^{+\infty} (2 - \delta_{n,0}) Q_{n-1/2}^{m=1}(\cosh q_1) \cos(nq_2) \cos q_3 \quad (2.99)$$

Remarques : Le développement de y s'obtient facilement de manière semblable :

$$y = \frac{2\sqrt{2}ai}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=0}^{+\infty} (2 - \delta_{n,0}) Q_{n-1/2}^{m=1}(\cosh q_1) \sin(nq_2) \cos q_3 \quad (2.100)$$

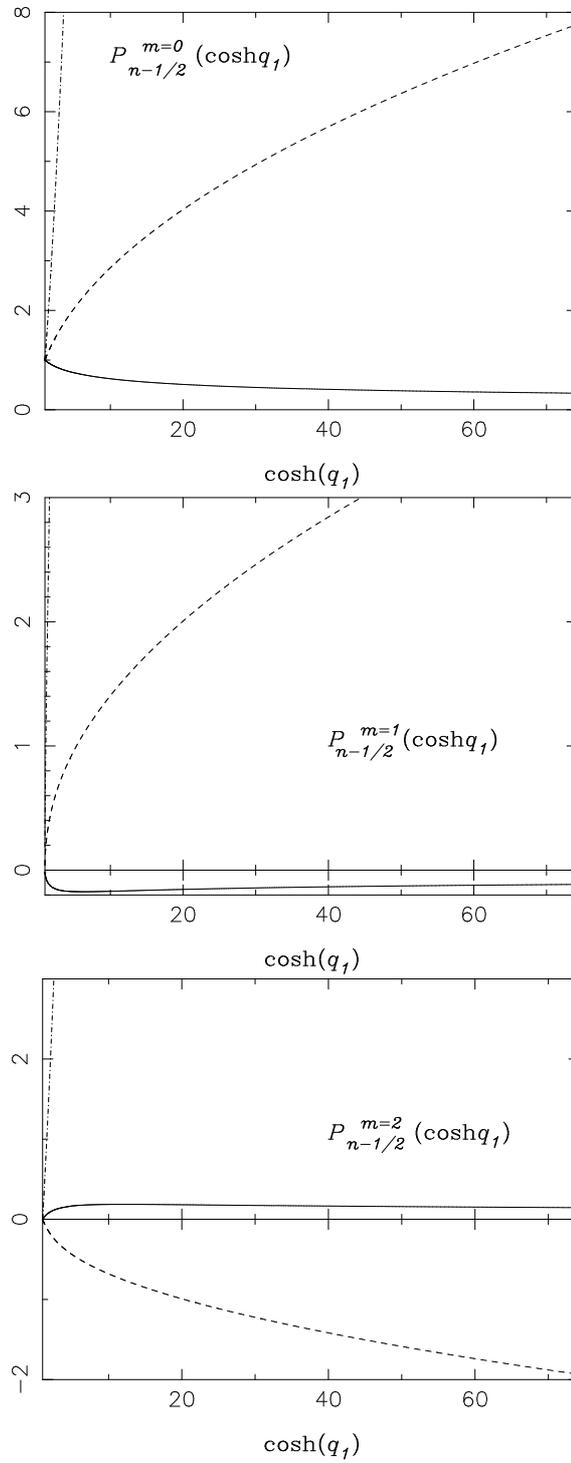


FIG. 2.5 – Fonctions toroidales ($P_{n-1/2}^m(\cosh q_1)$) pour $m = 0, 1, 2$ and $n = 0$ (trait continu), $n = 1$ (trait discontinu), $n = 2$ (trait pointillé discontinu).

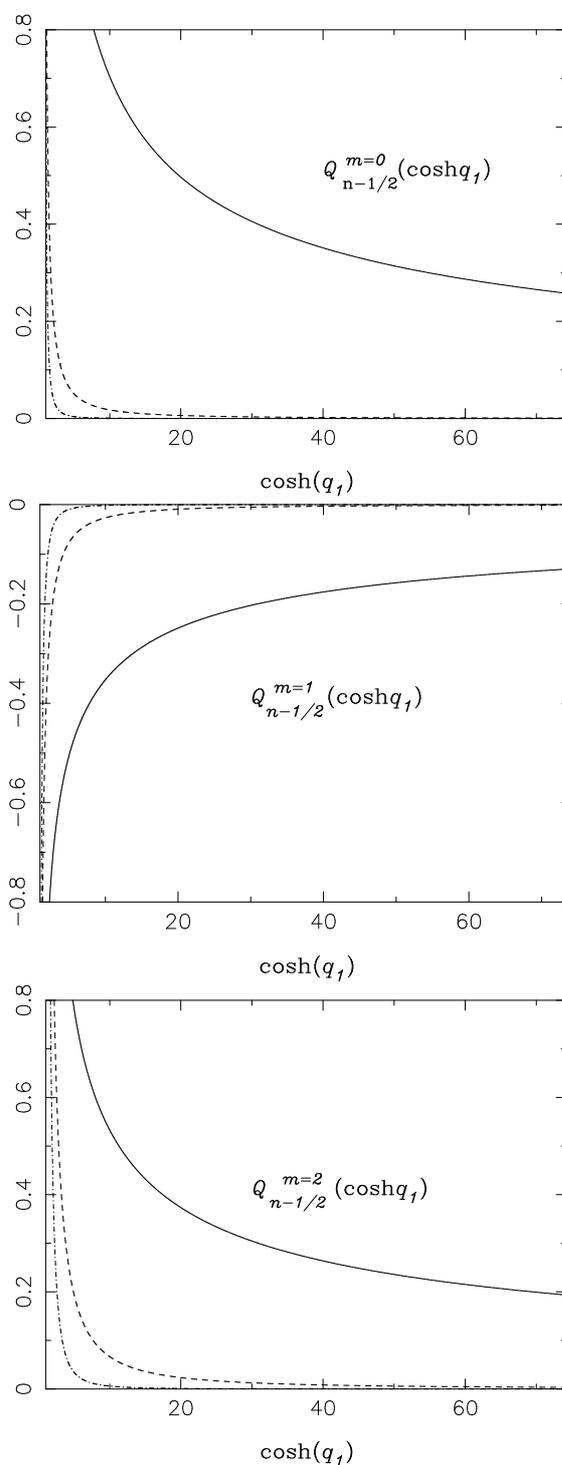


FIG. 2.6 – Fonctions de Legendre d'indices demi-entiers $Q_{n-1/2}^m(\cosh q_1)$ pour $m = 0, 1, 2$ and $n = 0$ (trait continu), $n = 1$ (trait discontinu), $n = 2$ (trait pointillé discontinu).

Chapitre 3

Plasmons de surface du tore

Le chapitre précédent nous a permis d'introduire toutes les subtilités du système de coordonnées toroïdales. Ce travail préliminaire permet de mieux comprendre pourquoi le problème des modes associés à un tore a été si peu étudié. Cela nous a permis également d'identifier dans la littérature une méthode stable d'évaluation numérique des fonctions toroïdales.

Dans la première partie de ce chapitre, nous verrons comment exprimer les potentiels intérieur et extérieur du tore en se basant sur les comportements asymptotiques des fonctions de Legendre d'indices demi-entiers. Cette nouvelle écriture des potentiels permettra d'appliquer les conditions de raccord à la surface du tore. Si cette application est aisée, nous verrons que la résolution du système d'équations auquel elle conduit l'est beaucoup moins. Nous nous efforcerons ensuite à découpler ce système afin de trouver une expression générale des relations de dispersion des modes de plasmons de surface d'un tore. Enfin, pour conclure ce chapitre, nous exprimerons analytiquement les potentiels et les champs électriques des différents modes propres.

3.1 Potentiels intérieur et extérieur

Pour commencer, rappelons les comportements asymptotiques à l'infini des fonctions toriques :

$$\lim_{q_1 \rightarrow \infty} P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) = \infty \quad (3.1)$$

$$\lim_{q_1 \rightarrow 0} Q_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) = \infty \quad (3.2)$$

Les fonctions $P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ sont donc divergentes pour des grandes valeurs de q_1 alors que les fonctions $Q_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ le sont pour des petites valeurs de cette même variable. Rappelons aussi que, dans le système de coordonnées toroïdales, $q_1 \rightarrow \infty$ correspond à la

partie de l'espace extérieure au tore dont la surface est définie par q_1^0 , alors que $q_1 \rightarrow 0$ définit une région de l'espace très proche de l'un et l'autre foyer $\pm a$ de ce tore.

Ces deux dernières remarques nous permettent de postuler la forme générale du potentiel électrique à l'intérieur $\Phi^{\text{in}}(\mathbf{r})$ et à l'extérieur du tore $\Phi^{\text{out}}(\mathbf{r})$:

$$\Phi(\mathbf{r}) = \begin{cases} \Phi^{\text{in}}(\mathbf{r}) & \text{si } q_1 > q_1^0 \\ \Phi^{\text{out}}(\mathbf{r}) & \text{si } q_1 < q_1^0 \end{cases} \quad (3.3)$$

avec :

$$\begin{cases} \Phi^{\text{in}}(\mathbf{r}) = \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \sum_{n=0}^{+\infty} B_n^m Q_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) U_n(q_2) e^{imq_3} \\ \Phi^{\text{out}}(\mathbf{r}) = \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \sum_{n=0}^{+\infty} A_n^m P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) U_n(q_2) e^{imq_3} \end{cases} \quad (3.4)$$

où les B_n^m et les A_n^m sont des constantes à déterminer.

Dans la suite de cette thèse, afin de ne pas surcharger les notations, nous avons utilisé les abréviations suivantes :

$$P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) \equiv P_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1) \quad (3.5)$$

$$Q_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1) \equiv Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1) \quad (3.6)$$

De même, nous allons noter également :

$$P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1^0) \equiv P_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) \quad (3.7)$$

$$Q_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1^0) \equiv Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) \quad (3.8)$$

Le fait d'exprimer un potentiel intérieur et extérieur est classiquement la première étape de résolution des problèmes d'électrostatique. Cette méthode se retrouve dans tous les ouvrages traitant du sujet [20], au travers de l'exemple simple de la sphère diélectrique. Le livre de Morse et Feshbach [48] compte parmi les ouvrages qui procurent le plus d'exemples de solutions correspondant à toutes les géométries abordables par une séparation de variables de l'équation de Laplace. La géométrie torique y est en partie traitée. Contrairement à la plupart des autres géométries, le calcul des modes propres n'y est pas entrepris, même si l'expression générale du potentiel est fournie. Ce fait est probablement dû à la difficulté de calculer les fonctions toroïdales. Nous avons vu précédemment que le calcul fiable et rapide de ces fonctions n'est possible que depuis quelques années. Il n'y a alors aucun obstacle pour entreprendre le calcul des modes propres.

3.2 Conditions de raccord

L'étape suivante consiste à appliquer les conditions de raccord de l'électrostatique à la surface du tore. La fonction diélectrique du tore sera notée $\varepsilon_2(\omega)$ et ε_1 désignera la fonction diélectrique du milieu extérieur.

La première condition de continuité est celle des potentiels. A la surface du tore $q_1 = q_1^0$, les potentiels extérieur et intérieur sont égaux. En coordonnées toroïdales, cette condition s'exprime :

$$\sum_{m=-\infty}^{+\infty} \sum_{n=0}^{+\infty} B_n^m Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) U_n(q_2) e^{imq_3} = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \sum_{n=0}^{+\infty} A_n^m P_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) U_n(q_2) e^{imq_3} \quad (3.9)$$

Dans cette égalité, les termes associés à un couple de valeurs de m et de n doivent être égaux. Nous obtenons ainsi la première condition sur les constantes A_n^m et B_n^m :

$$B_n^m Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) = A_n^m P_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) \quad (3.10)$$

Nous allons redéfinir les constantes B_n^m and A_n^m en posant :

$$A_n^m \rightarrow A_n^m Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) \quad (3.11)$$

$$B_n^m \rightarrow B_n^m P_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) \quad (3.12)$$

Cette écriture permet d'écrire très simplement la continuité des potentiels sous la forme :

$$B_n^m = A_n^m \quad (3.13)$$

Appliquons maintenant l'autre condition de raccord. A la surface du tore, la composante normale du vecteur $\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r})$ est continue :

$$\mathbf{D}^{in}(q_1 = q_1^0, q_2, q_3) \cdot \mathbf{e}_{q_1} = \mathbf{D}^{out}(q_1 = q_1^0, q_2, q_3) \cdot \mathbf{e}_{q_1} \quad (3.14)$$

$$\varepsilon_2(\omega) \mathbf{E}(q_1 = q_1^0, q_2, q_3) \cdot \mathbf{e}_{q_1} = \varepsilon_1 \mathbf{E}(q_1 = q_1^0, q_2, q_3) \cdot \mathbf{e}_{q_1} \quad (3.15)$$

$$\frac{\varepsilon_2(\omega)}{h_{q_1}} \frac{\partial \Phi(\mathbf{r})}{\partial q_1} \Big|_{q_1=q_1^0} = \frac{\varepsilon_1}{h_{q_1}} \frac{\partial \Phi(\mathbf{r})}{\partial q_1} \Big|_{q_1=q_1^0} \quad (3.16)$$

D'après (3.4) et (3.4), cette condition s'écrit

$$\sum_{m=-\infty}^{+\infty} \sum_{n=0}^{+\infty} A_n^m e^{imq_3} U_n(q_2) \left[\frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \sinh q_1^0}{2f(q_1^0, q_2)} P_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) - G_n^m \right] = 0 \quad (3.17)$$

où G_n^m est une fonction définie par :

$$G_n^m = \varepsilon_1 Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) \left[\frac{dP_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1)}{dq_1} \right]_{q_1=q_1^0} - \varepsilon_2(\omega) P_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) \left[\frac{dQ_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1)}{dq_1} \right]_{q_1=q_1^0} \quad (3.18)$$

Multiplions à présent l'équation (3.17) par e^{-iMq_3} . L'intégration sur q_3 de 0 à 2π isole le terme où $m = M$:

$$\sum_{n=0}^{\infty} A_n^M U_n(q_2) \left[\frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \sinh q_1^0}{2f(q_1^0, q_2)} P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) - G_n^m \right] = 0 \quad (3.19)$$

que nous réécrivons :

$$\sum_{n=0}^{\infty} A_n^M C_n^M U_n(q_2) = 2 \sum_{n=0}^{\infty} A_n^M G_n^M U_n(q_2) \cos q_2 \quad (3.20)$$

où C_n^M est une fonction définie par :

$$C_n^M = \left[(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \sinh q_1^0 P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) - 2G_n^M \cosh q_1^0 \right] \quad (3.21)$$

L'application des conditions de raccord en coordonnées toriques ne pose donc aucun problème. Toutefois, remarquons que l'expression de l'égalité (3.20) est différente suivant la forme prise par la fonction $U_n(q_2)$. Cette fonction peut être soit une fonction cosinus, soit une fonction sinus. D'autre part, la présence de $\cos q_2$ multipliant $U_n(q_2)$ dans le terme de droite de la relation (3.20) entraîne une difficulté. La présence de termes dont la dépendance suivant q_2 sera soit suivant $n+1$, soit suivant $n-1$, ne permet pas d'identifier simplement les termes dans les membres de gauche et droite de l'équation (3.20). De cette équation découlera un système d'équations qui sera différent suivant la parité de $U_n(q_2)$.

3.3 Système d'équations et son découplage

Nous allons entamer le découplage du système d'équations afin d'obtenir une ou des relations de dispersion. Comme expliqué précédemment, le système, donc le découplage, sera différent suivant la forme de la fonction $U_n(q_2)$. Afin de différencier les deux cas, nous allons parler de solutions paires lorsque $U_n(q_2)$ sera du type cosinus, et de solutions impaires lorsque $U_n(q_2)$ sera du type sinus.

3.3.1 Modes propres pairs

Commençons par le cas des modes pairs :

$$U_n(q_2) = \cos(nq_2) \quad (3.22)$$

L'égalité (3.20) se réécrit sous la forme suivante :

$$\sum_{n=0}^{\infty} A_n^M C_n^M \cos(nq_2) = 2 \sum_{n=0}^{\infty} A_n^M G_n^M \cos q_2 \cos(nq_2) \quad (3.23)$$

En utilisant la relation trigonométrique $2 \cos nq_2 \cos q_2 = \cos(n-1)q_2 + \cos(n+1)q_2$, nous voyons que les solutions obéissent à la relation suivante :

$$\sum_{n=0}^{\infty} A_n^M C_n^M \cos nq_2 = - \sum_{n=0}^{\infty} A_n^M G_n^M [\cos(n-1)q_2 + \cos(n+1)q_2] \quad (3.24)$$

Écrivons explicitement cette dernière relation :

$$\begin{aligned} A_0^M C_0^M &+ A_1^M C_1^M \cos q_2 \\ &+ A_2^M C_2^M \cos 2q_2 + A_3^M C_3^M \cos 3q_2 + \dots \\ &= -2A_0^M G_0^M \cos q_2 \\ &- A_1^M G_1^M (1 + \cos 2q_2) \\ &- A_2^M G_2^M (\cos q_2 + \cos 3q_2) \\ &- A_3^M G_3^M (\cos 2q_2 + \cos 4q_2) + \dots \end{aligned} \quad (3.25)$$

Écrite de cette façon, nous voyons qu'il n'existe pas d'autres moyens pour continuer que d'identifier les termes suivant leur dépendance en q_2 . L'équation précédente se réécrit alors sous forme d'un système d'équations infini :

$$\begin{aligned} A_0^M C_0^M &= -A_1^M G_1^M \\ A_1^M C_1^M &= -2A_0^M G_0^M - A_2^M G_2^M \\ A_2^M C_2^M &= -A_1^M G_1^M - A_3^M G_3^M \\ &\text{etc...} \end{aligned} \quad (3.26)$$

Classiquement, la résolution d'un système d'équations se fait grâce à l'utilisation d'une information supplémentaire sur les constantes. Toutefois, dans notre cas, nous ne possédons aucune information sur les différentes constantes A_n^M . De plus, pour des valeurs de

q_1^0 quelconques, les valeurs des fonctions G_n^M sont de même ordre de grandeur quelque soit les valeurs prises par les nombres quantiques M et n . Il n'est alors pas possible de définir un critère acceptable pour tronquer le système. Obtenir une relation de dispersion à partir de ce système nécessite alors de postuler certains coefficients A_n^M égaux à zéro. Cette procédure revient donc à considérer que le mode étudié ne possèdera que certaines symétries selon q_2 [96].

Mode d'ordre 0

Nous appelons "modes d'ordre 0", les modes dont la symétrie suivant la coordonnée q_2 ne dépend que d'un seul $n = N$. La somme sur $n = 0$ à $n = +\infty$ dans l'expression des potentiels disparaît pour ne laisser que les termes relatifs à la symétrie $n = N$ en q_2 . Les potentiels intérieur et extérieur s'écrivent :

$$\Phi^{\text{in}}(\mathbf{r}) = \sqrt{f(q_1, q_2)} A_N^M P_{N-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) Q_{N-\frac{1}{2}}^M(q_1) \cos(Nq_2) e^{iMq_3} \quad (3.27)$$

$$\Phi^{\text{out}}(\mathbf{r}) = \sqrt{f(q_1, q_2)} A_N^M Q_{N-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) P_{N-\frac{1}{2}}^M(q_1) \cos(Nq_2) e^{iMq_3}$$

Dans ce cas, le système d'équations (3.26) se limite seulement à l'égalité correspondante aux termes de dépendance en $\cos(Nq_2)$ et en posant les constantes $A_n^M = 0$ pour $n \neq N$. Ce système d'équation se simplifie radicalement :

$$A_N^M C_N^M = 0 \quad (3.28)$$

Nous arrivons donc à la relation suivante :

$$\Gamma_N^M(0) = C_N^M = 0 \quad (3.29)$$

qui est la relation de dispersion d'un mode pair d'ordre 0 dont la dépendance en q_3 est donnée par la valeur du nombre quantique M et dont la dépendance par rapport à q_2 est $\cos(Nq_2)$.

Mode d'ordre 1

Prenons maintenant deux relations consécutives quelconques du système (3.26) :

$$A_N^M C_N^M = -A_{N+1}^M G_{N+1}^M - A_{N-1}^M G_{N-1}^M \quad (3.30)$$

$$A_{N+1}^M C_{N+1}^M = -(1 + \delta_{N,0}) A_N^M G_N^M - A_{N+2}^M G_{N+2}^M \quad (3.31)$$

où $\delta_{N,0}$ est un delta de Kronecker. A partir de ces deux relations, nous pouvons étudier des modes dont la dépendance par rapport à $\cos(nq_2)$ implique N et $N+1$. De même que pour les modes d'ordres 0, les coefficients A_n^M pour $n \neq N$ et $n \neq N+1$ doivent être nuls pour que seuls les termes relatifs aux symétries $\cos(Nq_2)$ et $\cos((N+1)q_2)$ subsistent dans l'expression des potentiels. Le système obtenu est alors un système de deux équations à deux inconnues : A_N^M et A_{N+1}^M . Il est aisé d'en extraire une relation entre les différentes fonctions G_N^M et C_N^M :

$$\Gamma_N^M(1) = C_{N+1}^M C_N^M - (1 + \delta_{0,N}) G_N^M G_{N+1}^M = 0 \quad (3.32)$$

$$= C_{N+1}^M \Gamma_N^M(0) - G_N^M G_{N+1}^M \Gamma_N^M(-1) = 0 \quad (3.33)$$

N peut être supérieur ou égal à zéro et $\Gamma_N^M(-1) = (1 + \delta_{0,N})$. Cette égalité correspond à la relation de dispersion d'un mode pair d'ordre 1 dont la dépendance en q_3 est donnée par la valeur du nombre quantique M et dont la dépendance par rapport à q_2 implique N ($\cos Nq_2$) et $N+1$ ($\cos(N+1)q_2$).

Mode d'ordre quelconque (Π)

Appliquons cette méthode pour des modes d'ordre quelconque Π . Ces modes possèdent donc des dépendances par rapport à $\cos(nq_2)$ implique $n = N, N+1, \dots, N+\Pi$. A partir du système d'équations relatif à l'ordre, nous arrivons à la relation de dispersion suivante :

$$\Gamma_N^M(\Pi) = C_{N+\Pi}^M \Gamma_N^M(\Pi-1) - G_{N+\Pi}^M G_{N+\Pi-1}^M \Gamma_N^M(\Pi-2) = 0 \quad (3.34)$$

Cette égalité correspond à la relation de dispersion d'un mode M, N à l'ordre Π . Pour calculer cette relation, il est nécessaire de connaître les relations de dispersion pour ce mode aux ordres inférieurs. A partir des égalités suivantes :

$$\Gamma_N^M(0) = C_N^M \quad (3.35)$$

$$\Gamma_N^M(-1) = (1 + \delta_{0,N}) \quad (3.36)$$

et par la récurrence que définit (3.34), il est alors possible de calculer $\Gamma_N^M(\Pi)$ pour un ordre Π arbitraire.

3.3.2 Modes propres impairs

Pour les modes propres impairs, nous allons appliquer une procédure similaire. Pour commencer, nous avons :

$$U_n(q_2) = \sin(nq_2) \quad (3.37)$$

L'égalité (3.20) devient alors :

$$\sum_{n=0}^{\infty} A_n^M C_n^M \sin(nq_2) = 2 \sum_{n=0}^{\infty} A_n^M G_n^M \cos q_2 \sin(nq_2) \quad (3.38)$$

Appliquons ensuite la relation trigonométrique $2 \sin nq \cos q = \sin(n-1)q + \sin(n+1)q$.

Les solutions impaires obéissent alors à :

$$\sum_{n=0}^{\infty} A_n^M C_n^M \sin nq_2 = - \sum_{n=0}^{\infty} A_n^M G_n^M [\sin(n-1)q_2 + \sin(n+1)q_2] \quad (3.39)$$

Écrivons de manière explicite la série précédente :

$$\begin{aligned} A_1^M C_1^M \sin q_2 &+ A_2^M C_2^M \sin 2q_2 \\ &+ A_3^M C_3^M \sin(3q_2) + \dots \\ &= -A_1^M G_1^M \sin 2q_2 \\ &- A_2^M G_2^M (\sin q_2 + \sin 3q_2) \\ &- A_3^M G_3^M (\sin 2q_2 + \sin 4q_2) + \dots \end{aligned} \quad (3.40)$$

Nous pouvons noter que les termes relatifs à $n = 0$ n'interviennent pas dans ce système. Nous pouvons dès à présent déduire l'absence de solution impaire lorsque $n = 0$. Comme précédemment avec les solutions paires, identifions chaque terme en fonction de sa dépendance en q_2 . La série est alors équivalente au système d'équations suivant :

$$\begin{aligned} A_1^M C_1^M &= -A_2^M G_2^M \\ A_2^M C_2^M &= -A_1^M G_1^M - A_3^M G_3^M \\ &\text{etc...} \end{aligned} \quad (3.41)$$

qui ne peut être résolu qu'en postulant certains termes A_n^M nuls, ce qui revient à ne pas considérer certaines symétries en q_2 dans l'expression des potentiels correspondant au mode étudié.

En utilisant cette procédure, nous trouvons que la relation de dispersion d'un mode impair $M, N > 0$ d'ordre Π s'écrit :

$$\Gamma_N^M(\Pi) = C_{N+\Pi}^M \Gamma_N^M(\Pi-1) - G_{N+\Pi}^M G_{N+\Pi-1}^M \Gamma_N^M(\Pi-2) = 0 \quad (3.42)$$

L'évaluation par récurrence de cette relation nécessite de connaître la relation dispersion $\Gamma_N^M(0)$ du mode propre M, N à l'ordre 0 :

$$\Gamma_N^M(0) = C_N^M \quad (3.43)$$

$$\Gamma_N^M(-1) = 1 \quad (3.44)$$

Rappelons que cette relation n'existe pas pour $N = 0$. Les modes propres impairs ne peuvent supporter que des symétries en q_2 avec $N > 0$.

3.4 Relation de dispersion des modes propres

Les relations de dispersion paires (3.34) et impaires (3.42) que nous avons obtenues possèdent toutes deux la même structure :

$$\Gamma_N^M(\Pi) = C_{N+\Pi}^M \Gamma_N^M(\Pi - 1) - G_{N+\Pi}^M G_{N+\Pi-1}^M \Gamma_N^M(\Pi - 2) = 0 \quad (3.45)$$

Toutefois, le point de départ de leur évaluation diffère quelque peu, du fait que des modes impairs $N = 0$ ne peuvent exister :

$$\Gamma_N^M(-1) = (1 + \delta_{0,N}) \quad \text{avec } N \geq 0, \text{ modes pairs} \quad (3.46)$$

$$\Gamma_N^M(-1) = 1 \quad \text{avec } N \geq 1, \text{ modes impairs} \quad (3.47)$$

Ce calcul montre que à l'exception du cas $N = 0$, les modes propres pairs et impairs sont dégénérés. Les modes pairs et impairs posséderont donc la même fréquence. La méthode de découplage caractérise chaque mode par sa parité ainsi que par trois nombres :

- * Le nombre quantique M est relatif à la symétrie suivant la coordonnée azimuthale q_3 (e^{iMq_3}).
- * Le nombre quantique N renseigne sur l'ordre le plus bas impliqué dans la dépendance du mode selon la coordonnée q_2 ($U_N(q_2)$), elle même paire ou impaire.
- * L'ordre du mode indique l'ordre le plus élevé impliqué dans la dépendance selon q_2 ($U_n(q_2)$ avec $n = N, N + 1, \dots, N + \Pi$).

Ces caractéristiques apparaîtront plus clairement au niveau des équations (3.48) et (3.49) ci-dessous. Par la suite, et afin d'alléger les notations, nous utiliserons simplement la notation $(M, N; \Pi)$ pour désigner le mode M, N d'ordre Π .

La dépendance des modes $(M, N; \Pi)$ par rapport à ω apparaît dans la fonction diélectrique du métal composant le tore. Les fréquences des modes vont également dépendre du milieu environnant au travers de la constante diélectrique du milieu extérieur. Au travers des expressions des fonctions C_n^m et G_n^m , la relation de dispersion dépend explicitement du paramètre q_1^0 qui définit la surface du tore. Ce paramètre étant une fonction du rapport épaisseur-rayon intérieur du tore, les fréquences de résonance plasmon du tore vont varier suivant ce rapport, comme les modes de l'anneau introduits au premier chapitre. Notons

que la relation de dispersion est indépendante de la valeur a du foyer. Deux tores possédant le même rapport d/R_{in} vont donc, dans la limite de l'approximation non-retardée, posséder les mêmes fréquences.

Cette procédure nous a permis de trouver des relations de dispersion pour un tore métallique. Toutefois, il existe une infinité de combinaison possible entre les trois nombres M , N et Π . Le nombre de modes propres possible émerge donc comme infini.

3.5 Structure des modes propres

Dans cette section, nous allons chercher les expressions des potentiels et champs électriques relatifs aux modes plasmons d'un tore métallique. L'étude sur la répartition des charges et des champs électriques des différents modes plasmons nous permettra de mieux comprendre la structure de ces modes. Nous pourrons alors anticiper le fait que seuls les modes à faible symétrie ($N = 0$ ou 1) et dont l'ordre est faible ($\Pi = 1$) peuvent être efficacement excité par une onde plane. Par conséquent, ils détermineront significativement les propriétés optiques de la particule.

3.5.1 Potentiels

Pour un mode (M, N, Π) , les formes analytiques du potentiel à l'intérieur et à l'extérieur du tore sont données par :

$$\Phi_{(M, N; \Pi)}^{\text{in}}(\mathbf{r}) = \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) U_n(q_2) e^{iMq_3} \quad (3.48)$$

$$\Phi_{(M, N; \Pi)}^{\text{out}}(\mathbf{r}) = \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) U_n(q_2) e^{iMq_3} \quad (3.49)$$

où $U_n(q_2)$ rend compte de la parité. Rappelons que les modes impairs $N = 0$ ne sont pas définis.

Les constantes A_N^M ne peuvent être déterminées. Nous allons poser en guise de normalisation $A_N^M = 1$. Donc suivant l'ordre du mode, nous devons chercher les valeurs des différents coefficients A_n^M intervenant dans l'expression des potentiels. On déduit leurs expressions à partir du système d'équation relatifs à la parité et à l'ordre du mode. Par exemple, pour le mode $(M, N; 1)$, le coefficient A_{N+1}^M est donnée par la relation (3.31) :

$$A_{N+1}^M = -\frac{A_N^M C_N^M}{G_{N+1}^M} = \frac{C_N^M}{G_{N+1}^M} \quad (3.50)$$

3.5.2 Champs électriques associés aux modes propres

Calculer l'expression du champ électrique associé à un mode ne pose à priori pas de problème particulier. Il suffit d'utiliser la relation entre potentiel et champ électrique de l'électrostatique :

$$\mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}(\mathbf{r}) = -\nabla\Phi_{(M,N;\Pi)}(\mathbf{r}) \quad (3.51)$$

où le gradient est exprimé en coordonnées toroïdales et $\Phi_{(M,N;\Pi)}(\mathbf{r})$ est le potentiel intérieur (eq. 3.48) ou extérieur (eq. 3.49) du mode.

Chaque composante du champ électrique peut être trouvée de manière analytique par [48]:

$$\mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_1} = -\frac{1}{h_{q_1}} \frac{\partial\Phi_{(M,N;\Pi)}(\mathbf{r})}{\partial q_1} \quad (3.52)$$

$$\mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_2} = -\frac{1}{h_{q_2}} \frac{\partial\Phi_{(M,N;\Pi)}(\mathbf{r})}{\partial q_2} \quad (3.53)$$

$$\mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_3} = -\frac{1}{h_{q_3}} \frac{\partial\Phi_{(M,N;\Pi)}(\mathbf{r})}{\partial q_3} \quad (3.54)$$

Prenons par exemple le développement de la composante $\mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}^{in}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_1}$ à partir de $\Phi_{(M,N;\Pi)}^{in}(\mathbf{r})$:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}^{in}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_1} &= -\frac{1}{h_{q_1}} \frac{\partial\Phi_{(M,N;\Pi)}^{in}(\mathbf{r})}{\partial q_1} \\ &= -\frac{\cosh q_1 - \cos q_2}{a} \frac{\partial}{\partial q_1} \left[\sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) U_n(q_2) e^{iMq_3} \right] \\ &= -\frac{\cosh q_1 - \cos q_2}{a} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) U_n(q_2) e^{iMq_3} \\ &\quad \left[\frac{\sinh q_1}{2\sqrt{\cosh q_1 - \cos q_2}} Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) + \sqrt{\cosh q_1 - \cos q_2} \frac{\partial Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1)}{\partial q_1} \right] \\ &= -\frac{\sqrt{f(q_1, q_2)}}{a} e^{iMq_3} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) \\ &\quad \left[\frac{\sinh q_1}{2} Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) U_n(q_2) + f(q_1, q_2) U_n(q_2) \frac{dQ_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1)}{dq_1} \right] \end{aligned} \quad (3.55)$$

Avant de continuer ce développement, remarquons que la fonction $U_n(q_2)$ multiplie la fonction $f(q_1, q_2) = \cosh q_1 - \cos q_2$. $U_n(q_2)$ étant une fonction cosinus ou sinus, la présence

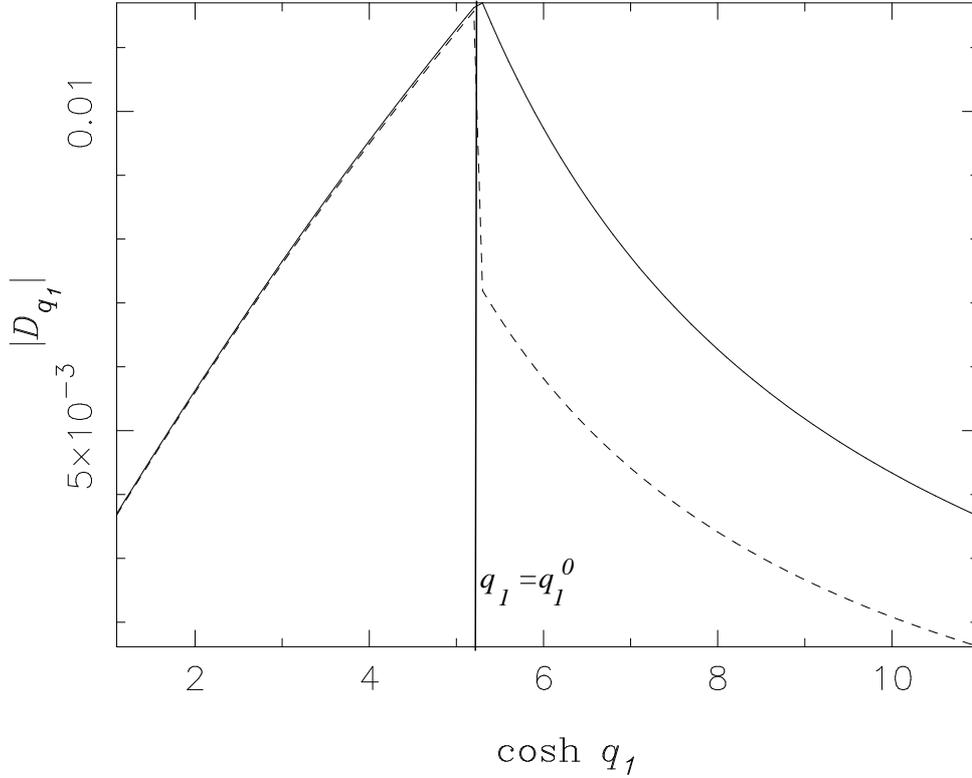


FIG. 3.1 – Composantes $\mathbf{D}_{(M,N;\Pi=2)}^{\text{in}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_1}$ calculées à partir de la relation (3.58) (trait continu) et à partir de (3.55) (traits discontinus). Sans enlever les dépendances en $N - 1$ et $N + 2$ dans les expressions du champ, les conditions de raccord ne sont plus satisfaites (courbe en traits continus).

de cette multiplication va introduire des dépendances en $N - 1$, N , $N + 1$, et $N + 2$ dans l'expression de la composante du champ électrique intérieur :

$$(\cosh q_1 - \cos q_2)U_N(q_2) = U_N(q_2) \cosh q_1 - \frac{1}{2}(U_{N-1}(q_2) + U_{N+1}(q_2)) \quad (3.56)$$

$$(\cosh q_1 - \cos q_2)U_{N+1}(q_2) = U_{N+1}(q_2) \cosh q_1 - \frac{1}{2}(U_N(q_2) + U_{N+2}(q_2)) \quad (3.57)$$

Cependant, le découplage du système réalisé précédemment ne s'effectue que sur les dépendances en N et en $N + 1$. Pour que les conditions de raccord sur les champs soient satisfaites, les dépendances en $N - 1$ et en $N + 2$ introduites par la présence de $1/h_{q_1}$, $1/h_{q_2}$ et $1/h_{q_3}$ dans les expressions des champs doivent être écartées. Nous avons représenté sur la figure 3.1 les valeurs de la composante $\mathbf{D}_{(M,N;\Pi)}^{\text{in}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_1}$ du déplacement électrique à partir des relations (3.58) (trait continu) où les dépendances $N - 1$ et $N + 2$ ont été écartées. La courbe en trait discontinus représente les valeurs de cette composante du champ contenant ces dépendances (eq. 3.55). Si les dépendance en $N - 1$ et $N + 2$ dans les

expressions du champ ne sont pas enlevées, une discontinuité apparaît à l'interface métal-diélectrique, tandis que la condition de continuité à l'interface est rétablie lorsqu'elles sont écartées.

Nous obtenons alors :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}^{\text{in}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_1} &= E_{q_1}(q_1, q_2) e^{iMq_3} \\ &= \frac{\sqrt{f(q_1, q_2)}}{a} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) e^{iMq_3} \\ &\times [S_n^M \{(1 - \delta_{n,N})U_{n-1}(q_2) + (1 - \delta_{n,N+\Pi})U_{n+1}(q_2)\} - T_n^M U_n(q_2)] \end{aligned} \quad (3.58)$$

avec

$$T_n^M = \frac{1}{2} Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) \sinh q_1 + \frac{dQ_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1)}{dq_1} \cosh q_1 \quad (3.59)$$

$$S_n^M = \frac{\sigma_n}{2} \frac{dQ_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1)}{dq_1} \quad (3.60)$$

où σ_n est défini par :

$$\sigma_n = \begin{cases} 1 + \delta_{n,0} & (\text{even}) \\ 1 & (\text{odd}) \end{cases} \quad (3.61)$$

En transposant ce calcul à la composante q_2 du champ électrique intérieur, nous obtenons l'expression suivante :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}^{\text{in}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_2} &= E_{q_2}(q_1, q_2) e^{iMq_3} \\ &= \frac{\sqrt{f(q_1, q_2)}}{a} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) e^{iMq_3} \\ &\times \left[\frac{2n-1}{4(n-1)} U'_{n-1}(q_2) (1 - \delta_{n,N}) + \frac{2n + \sigma_n}{4(n+1)} U'_{n+1}(q_2) (1 - \delta_{n,N+\Pi}) - \cosh q_1 U'_n(q_2) \right] \end{aligned} \quad (3.62)$$

où $U'_n(q_2)$ représente la dérivée de $U_n(q_2)$:

$$U'_n(q_2) = \frac{dU_n(q_2)}{dq_2} \quad (3.63)$$

Pour finir, l'expression de la composante en q_3 du champ électrique intérieur est :

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}^{\text{in}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_3} &= E_{q_3}(q_1, q_2) e^{iMq_3} & (3.64) \\
&= \frac{iM \sqrt{f(q_1, q_2)}}{a \sinh q_1} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) e^{iMq_3} \\
&\times \left[\frac{\sigma_n}{2} U_{n-1}(q_2)(1 - \delta_{n,N}) + \frac{1}{2} U_{n+1}(q_2)(1 - \delta_{n,N+\Pi}) - \cosh q_1 U_n(q_2) \right]
\end{aligned}$$

Obtenir alors les expressions analytiques des champs électriques extérieurs ne présente pas de difficulté puisqu'il suffit de d'intervertir la fonction $Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1)$ et $Q_{n+\frac{1}{2}}^M(q_1)$ par les fonctions $P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1)$ et $P_{n+\frac{1}{2}}^M(q_1)$:

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}^{\text{out}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_1} &= E_{q_1}(q_1, q_2) e^{iMq_3} & (3.65) \\
&= \frac{\sqrt{f(q_1, q_2)}}{a} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) e^{iMq_3} \\
&\times \left[S_n^M \{ (1 - \delta_{n,N}) U_{n-1}(q_2) + (1 - \delta_{n,N+\Pi}) U_{n+1}(q_2) \} - T_n^M U_n(q_2) \right]
\end{aligned}$$

avec

$$W_n^M = \frac{1}{2} P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) \sinh q_1 + \frac{dP_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1)}{dq_1} \cosh q_1 \quad (3.66)$$

$$Z_n^M = \frac{\sigma_n}{2} \frac{dP_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1)}{dq_1} \quad (3.67)$$

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}^{\text{out}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_2} &= E_{q_2}(q_1, q_2) e^{iMq_3} & (3.68) \\
&= \frac{\sqrt{f(q_1, q_2)}}{a} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) e^{iMq_3} \\
&\times \left[\frac{2n-1}{4(n-1)} U'_{n-1}(q_2)(1 - \delta_{n,N}) + \frac{2n+\sigma_n}{4(n+1)} U'_{n+1}(q_2)(1 - \delta_{n,N+\Pi}) - \cosh q_1 U'_n(q_2) \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}^{\text{out}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_3} &= E_{q_3}(q_1, q_2) e^{iMq_3} & (3.69) \\
&= \frac{iM \sqrt{f(q_1, q_2)}}{a \sinh q_1} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) e^{iMq_3} \\
&\times \left[\frac{\sigma_n}{2} U_{n-1}(q_2)(1 - \delta_{n,N}) + \frac{1}{2} U_{n+1}(q_2)(1 - \delta_{n,N+\Pi}) - \cosh q_1 U_n(q_2) \right]
\end{aligned}$$

Chapitre 4

Nanotore métallique dans un champ électrique uniforme

Nous avons vu dans le premier chapitre que l'utilisation de l'approximation électrostatique permet de trouver très facilement l'expression de la polarisabilité d'une nanosphère. Nous pouvons alors utiliser la même démarche dans le cas de nanotores. En effet, si l'onde plane incidente a pour amplitude $E_0 e^{ikr}$ et si le tore possède des dimensions très petites devant la longueur d'onde ($R_{in} < \lambda$), alors le champ dans la région de la particule s'écrit :

$$\mathbf{E}_0(r \leq R_{in}) \simeq E_0 e^{i(kR_{in} + \omega t)} \mathbf{e}_r \simeq E_0 e^{i\omega t} \mathbf{e}_r \quad (4.1)$$

À un instant t donné, le champ à l'intérieur de la particule peut être considéré comme uniforme. La géométrie du tore suggère d'étudier deux directions du champ : la première correspond à un champ uniforme dirigé suivant l'axe z (voir figure 4.1 a), le champ appliqué est dit axial. Cette configuration nous permettra d'étudier le problème de l'interaction de la particule avec une onde plane dont le vecteur d'onde est dirigé dans le plan du tore. La seconde configuration correspond à un champ dirigé suivant l'axe x (ou y) (voir figure 4.1 b), le champ est planaire, et correspond à la situation du vecteur d'onde dirigé suivant l'axe z .

Ce chapitre étudie le problème d'un tore diélectrique ne possédant pas de charge libre, placé dans un champ électrostatique uniforme. Étudier ce système revient à résoudre l'équation de Laplace avec les conditions de raccord à l'interface du tore, plus une condition supplémentaire sur le comportement des champs à l'infini ($q_1 \rightarrow 0$). Par cette étude nous montrerons que pour des tores fins, seuls les modes propres de plus bas ordres interviennent dans les propriétés optiques de ces particules. Nous chercherons les expressions de la polarisabilité d'un nanotore métallique et nous en déduirons les sections efficaces de diffusion et d'extinction.

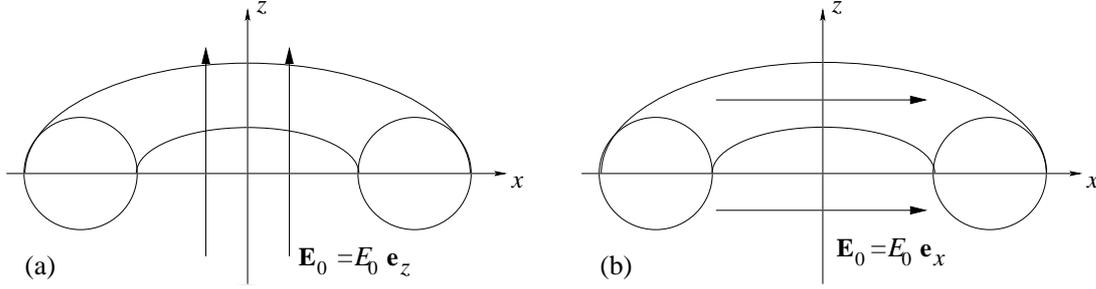


FIG. 4.1 – Champ électrostatique appliqué à un tore diélectrique. Champ axial (a), champ planaire (b).

4.1 Tore métallique dans un champ uniforme axial

4.1.1 Champ appliqué et conditions de raccord

La première des configurations que nous allons étudier correspond au cas où le champ uniforme est dirigé selon l'axe z :

$$\mathbf{E}_0 = E_0 \mathbf{e}_z = E_0 \nabla z \quad (4.2)$$

Nous connaissons déjà l'expression de z sous forme d'un développement des fonctions de Legendre à indice demi-entier $Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1)$. (équation 2.96). Le potentiel électrostatique relatif à ce champ appliqué s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \Phi^{\text{app}}(\mathbf{r}) &= -E_0 z \\ &= -\frac{4\sqrt{2}aE_0}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=1}^{+\infty} n Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1) \sin(nq_2) \end{aligned} \quad (4.3)$$

En absence de charge libre à l'intérieur et à l'extérieur du tore, nous devons résoudre l'équation de Laplace avec les conditions de raccord en $q_1 = q_1^0$ et une condition supplémentaire à l'infini. La relation 4.3 montre que le potentiel appliqué ne possède pas de dépendance en q_3 . Afin de respecter cette symétrie azimuthale, m doit être posé égal à 0. Remarquons également que la dépendance par rapport à q_2 des potentiels intérieur et extérieur au tore doit être choisi impaire ($U_n(q_2) = \sin(nq_2)$) afin de respecter celle du potentiel Φ^{app} . Les symétries du problème conduisent aux énoncés suivants des potentiels intérieur et extérieur :

$$\begin{cases} \Phi^{\text{in}}(\mathbf{r}) = \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=0}^{+\infty} D_n Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1) \sin(nq_2) \\ \Phi^{\text{out}}(\mathbf{r}) = \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=0}^{+\infty} [A_n P_{n-1/2}^{m=0}(q_1) + B_n Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1)] \sin(nq_2) \end{cases} \quad (4.4)$$

où A_n , B_n et D_n sont de coefficients à déterminer en appliquant les conditions de raccord.

Appliquons en premier lieu, la condition de raccord des potentiels à l'infini :

$$\Phi^{\text{out}}(\mathbf{r}) \longrightarrow \Phi^{\text{app}}(\mathbf{r}), \text{ pour } r \longrightarrow \infty \quad (4.5)$$

ce qui équivaut à écrire :

$$\Phi^{\text{out}}(\mathbf{r}) \longrightarrow \Phi^{\text{app}}(\mathbf{r}), \text{ pour } q_1 \longrightarrow 0 \quad (4.6)$$

Cette condition nous donne alors l'expression des constantes B_n :

$$B_n = -n E_0 \frac{4a\sqrt{2}}{\pi} \quad (4.7)$$

Les coefficients D_n sont déterminés par la continuité des potentiels à la surface du tore, c'est-à-dire, en $q_1 = q_1^0$:

$$D_n = A_n P_{n-1/2}^{m=0}(q_1^0) + B_n \quad (4.8)$$

$$= A_n P_{n-1/2}^{m=0}(q_1^0) - n E_0 \frac{4a\sqrt{2}}{\pi} \quad (4.9)$$

Pour finir, l'utilisation des conditions de raccord sur les champs électrique à l'interface du tore avec le milieu extérieur conduit à la relation suivante :

$$\begin{aligned} & (A_1 C_1^0 + A_2 G_2^0 - B_1 Z_1^0 + B_2 K_2^0) \sin(q_2) \\ & + (A_2 C_2^0 + A_1 G_1^0 + A_3 G_3^0 - B_2 Z_2^0 + B_3 K_3^0 + B_1 K_1^0) \sin(2q_2) \\ & + (A_3 C_3^0 + A_2 G_2^0 + A_4 G_4^0 - B_3 Z_3^0 + B_4 K_4^0 + B_2 K_2^0) \sin(3q_2) \\ & + \dots = 0 \end{aligned} \quad (4.10)$$

où les fonctions G_n^m et C_n^m ont déjà été définies au chapitre 3 (éq. 3.18 et éq. 3.21). Les fonctions Z_n^m et K_n^m ont pour expressions :

$$K_n^m = (\varepsilon_2 - \varepsilon_1) \left. \frac{dQ_{n-1/2}^m}{dq_1} \right]_{q_1^0} \quad (4.11)$$

$$Z_n^m = 2 \cosh(q_1^0) K_n^m - (\varepsilon_2 - \varepsilon_1) \sinh(q_1^0) \left. \frac{dQ_{n-1/2}^m(q_1)}{dq_1} \right]_{q_1^0} \quad (4.12)$$

En identifiant les termes suivant leur dépendance en q_2 , nous montrons que les coefficients A_n sont donnés par un système infini d'équations linéaires :

$$A_1 C_1^0 = -A_2 G_2^0 + B_1 Z_1^0 - B_2 K_2^0 \quad (4.13)$$

$$A_2 C_2^0 = -A_1 G_1^0 - A_3 G_3^0 + B_2 Z_2^0 - B_3 K_3^0 - B_1 K_1^0 \quad (4.14)$$

$$A_3 C_3^0 = -A_2 G_2^0 - A_4 G_4^0 + B_3 Z_3^0 - B_4 K_4^0 - B_2 K_2^0 \quad (4.15)$$

Ce système peut être résolu en utilisant la méthode proposée par J. D. Love en 1972 [70]. En partant de la série génératrice de ce système d'équations, il est possible d'écrire une équation inhomogène du second ordre. La résolution nécessite alors l'utilisation des fonctions de Green en coordonnées toroïdales et de leur propriétés [97]. Néanmoins, cette méthode ne peut s'appliquer que dans le cadre du champ appliqué axial. Avec pour objectif d'étudier également le cas relatif au champ planaire, nous avons choisi d'appliquer une méthode équivalente à celle communément utilisée en coordonnées bisphériques [98, 99]. La démarche consiste à étudier le développement de z en fonctions des paramètres du tore, afin de dégager un critère validant la troncature du développement en série sur les fonctions toroïdales.

4.1.2 Approximation des tores fins

Nous avons montré dans le chapitre 2 que la coordonnée z s'exprime sous forme d'une série infinie des fonctions de Legendre $Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1)$. Sur les figures 4.2, nous avons tracé les courbes qui correspondent à :

$$z \simeq \frac{4\sqrt{2}a}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=1}^{n_{max}} n Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1) \sin(nq_2) \quad (4.16)$$

pour q_2 compris entre 0 et π et pour différentes valeurs de q_1 (courbes en trait plein) : $q_1 = 5$ (figure a), $q_1 = 2$ (figures b et c), $q_1 = 0.1$ (figures c, d et f). n_{max} est le nombre maximal de symétries prises en compte dans le développement de la coordonnée z . Sur ces figures, les valeurs données par la série tronquée sont comparées aux valeurs exactes issues de l'expression $z = a \sin(q_2)/f(q_1, q_2)$ (courbes en traits discontinus).

Nous remarquons que plus la coordonnée q_1 prend une grande valeur, plus la convergence de la série (4.16) est rapide. Un faible nombre de symétries selon q_2 ($n = 0, 1, 2, \dots, n_{max}$) suffit donc pour retrouver les valeurs de z obtenues par la formule exacte. A partir des exemples correspondant à nos figures, nous voyons que pour $q_1 = 5$, la série peut être tronquée à partir de $n_{max} = 2$. Pour $q_1 = 0.1$, la convergence de la série ne s'obtient qu'à

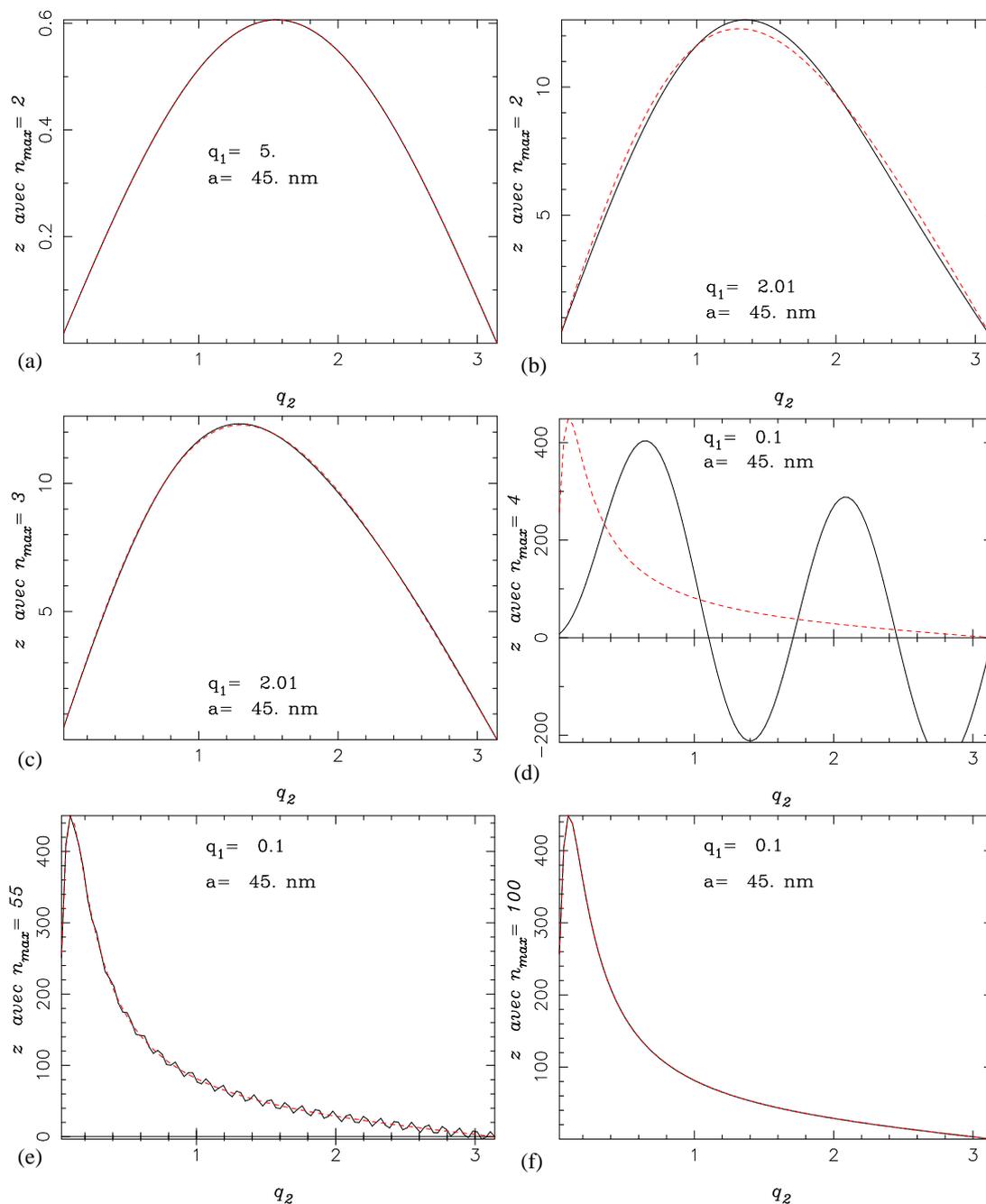


FIG. 4.2 – Valeurs exactes (traits interrompus) et valeurs approchées (traits pleins) de la coordonnée z en fonction de q_1 , q_2 et n_{max} .

$d/R_{in} =$	0.5	1	1.5
$\cosh q_1^0 =$	5.	3.	2.33
$n = 1$	0.0506295098	0.112888542	0.1715243
$n = 2$	$3.83760488 \cdot 10^{-3}$	$1.45445773 \cdot 10^{-2}$	$2.90729534 \cdot 10^{-2}$
$n = 3$	$3.23133148 \cdot 10^{-4}$	$2.0808454 \cdot 10^{-3}$	$5.46939051 \cdot 10^{-3}$
$n = 4$	$2.85663616 \cdot 10^{-5}$	$3.12506877 \cdot 10^{-4}$	$1.07991306 \cdot 10^{-3}$
$n = 5$	$2.59743222 \cdot 10^{-6}$	$4.82680305 \cdot 10^{-5}$	$2.19269492 \cdot 10^{-4}$

TAB. 4.1 – Valeurs de la fonction $Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1^0)$ pour $n = 1, 2, 3, 4, 5$ évaluée pour $q_1^0 = 5., 3.$ et 2.33

partir de $n_{max} = 100$. En coordonnées toroïdales, plus un point sera éloigné du foyer a , plus la valeur de n_{max} devra être grande si on veut décrire correctement la coordonnée z à l'aide de la relation (4.16).

Considérons que le tore placé dans le champ uniforme soit "fin", c'est-à-dire $d/R_{in} < 1$. La valeur de la constante q_1^0 permettant de décrire la surface d'un tel tore est très grande comparée à 1, ce qui revient à écrire $\cosh q_1 \gg 1$. Les fonctions de Legendre $Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1^0)$ intervenant dans l'expression du champ appliqué peuvent être approximées en utilisant [69]:

$$Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1^0) \approx \frac{\sqrt{\pi} \Gamma(n + 1/2)}{2^{n+1/2} n! \cosh^{n+1/2} q_1^0} \quad (4.17)$$

Comme l'expression (4.17) possède un facteur $\cosh^{n+1/2} q_1^0 \ll 1$, plus n sera grand, plus la valeur de la fonction $Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1^0)$ sera faible. A l'aide de cette formule, nous voyons que pour un tore fin, les fonctions $Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1^0)$ peuvent être posées égales à 0 si $n > 1$ [100]. Afin de vérifier cette "approximation des tores fins", nous avons reporté dans le tableau 4.1.2, les valeurs correspondantes de cette fonction pour différents facteurs de forme $d/R_{in} = 0.5, 1, 1.5$ et pour les premiers nombres quantiques $n = 1, 2, 3, 4, 5$. D'après ces valeurs, nous voyons que pour des tores caractérisés par un rapport d/R_{in} inférieur à 1 environ, nous pouvons poser en première approximation $Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1^0) = 0$ si $n > 2$. Pour des tores fins, le potentiel appliqué au niveau de la particule s'écrit alors sous la forme suivante :

$$\Phi^{app}(\mathbf{r}) = -E_0 z \simeq -E_0 \frac{4\sqrt{2}a}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=1}^2 n Q_{n-1/2}^{m=0}(q_1) \sin(nq_2) \quad (4.18)$$

Sur la figure 4.3, nous avons représenté le potentiel $\Phi^{app}(\mathbf{r})$ calculé avec $n_{max} = 2$ dans le développement de z (a) et le potentiel correspondant à l'expression exacte (b). La direction

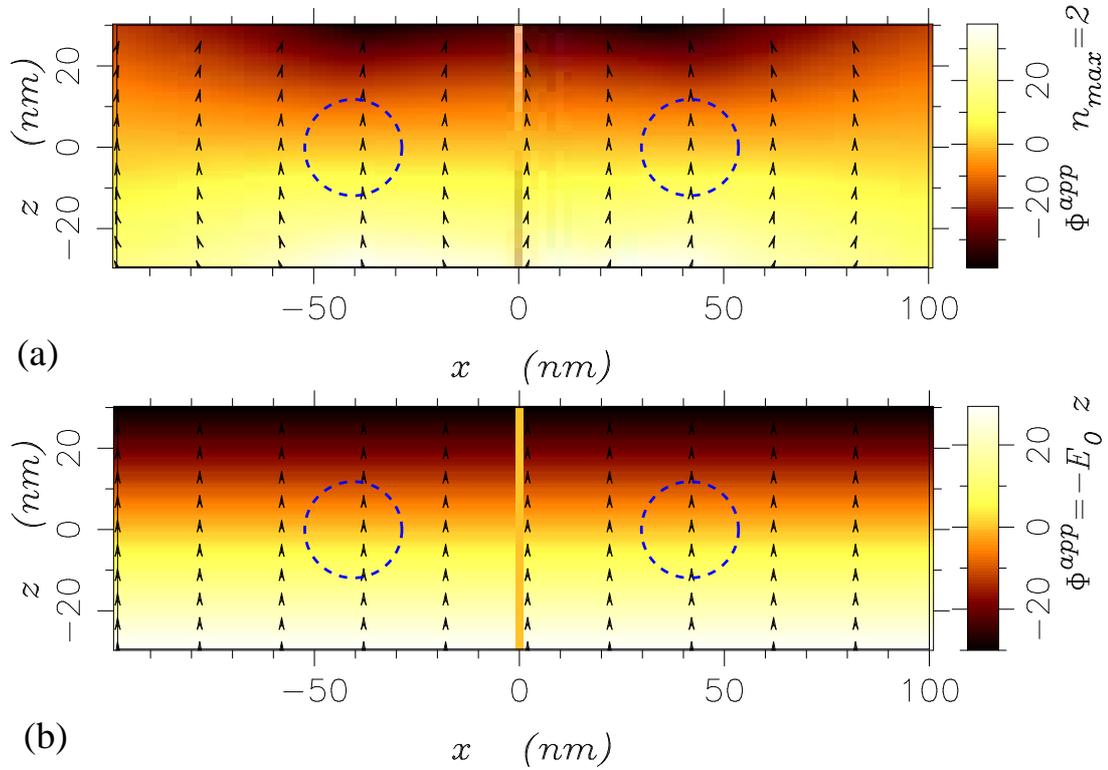


FIG. 4.3 – Potentiel appliqué $\Phi^{\text{app}}(\mathbf{r}) = -E_0 z$ dans le plan xz . (a) : potentiel calculé avec $n_{\text{max}} = 2$ dans le développement de z . (b) : potentiel correspondant à l'expression exacte. Les paramètres du tore sont $a = 45 \text{ nm}$ et $q_1^0 = 2$. Les flèches noires représentent la direction du champ électrique correspondant. En $x = 0$, la coordonnée q_0 tend vers la valeur 0. Le programme de calcul des fonctions toriques que nous utilisons ne converge pas si $q_1 = 0$. L'évaluation numérique de ces fonctions n'est pas possible sur l'axe des ordonnées.

du champ électrique pour chaque cas est représenté par des flèches. Nous voyons que le champ approché par la formule (4.18) peut être considéré uniforme dans le tore.

Dans l'ensemble de cette étude, nous nous intéresserons uniquement à des tores dont la valeur de l'épaisseur d ne dépasse que rarement celle du rayon intérieur R_{in} . Nous ne considérerons que les symétries $n = 1$ et $n = 2$ pour rendre compte de l'effet du potentiel appliqué sur les tores fins. Cette approximation oblige alors à ne garder que les équations et les termes relatifs à ces symétries dans le système d'équations (4.13). L'application d'un tel champ revient alors à considérer les fonctions C_n^0 , G_n^0 , Z_n^0 et K_n^0 comme nulles pour

$n > 2$. Le système à résoudre est alors réduit à :

$$A_1 C_1^0 = -A_2 G_2^0 + B_1 Z_1^0 - B_2 K_2^0 \quad (4.19)$$

$$A_2 C_2^0 = -A_1 G_1^0 + B_2 Z_2^0 - B_1 K_1^0 \quad (4.20)$$

Le système est résolu très facilement et amène aux expressions de A_1 et A_2 suivantes :

$$A_1 = B_1 \frac{C_2^0 (Z_1^0 - 2K_2^0) - G_2^0 (2Z_2^0 - K_1^0)}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \quad (4.21)$$

$$A_2 = B_1 \frac{C_1^0 (2Z_2^0 - K_1^0) - G_1^0 (Z_1^0 - 2K_2^0)}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \quad (4.22)$$

que nous pouvons écrire en factorisant le terme $(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)$ du numérateur :

$$A_1 = a E_0 \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) W_1}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \quad (4.23)$$

$$A_2 = a E_0 \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) W_2}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \quad (4.24)$$

Nous voyons donc apparaître au dénominateur de A_1 et A_2 , la relation de dispersion du mode propre d'ordre 1 $M = 0$ $N = 1$ (éq. 3.33). W_1 et W_2 sont des fonctions de q_1^0 et ont pour expressions :

$$\begin{aligned} W_1 = & -\frac{4\sqrt{2}}{\pi} \left[-2 \frac{dQ_{3/2}^0}{dq_1} \right]_{q_1^0} \{G_2(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + C_2\} \\ & + \left[\frac{dQ_{1/2}^0}{dq_1} \right]_{q_1^0} \{C_2(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + G_2\} \end{aligned} \quad (4.25)$$

$$\begin{aligned} W_2 = & -\frac{4\sqrt{2}}{\pi} \left[2 \frac{dQ_{3/2}^0}{dq_1} \right]_{q_1^0} \{C_1(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + G_1\} \\ & + \left[\frac{dQ_{1/2}^0}{dq_1} \right]_{q_1^0} \{G_1(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + C_1\} \end{aligned} \quad (4.26)$$

Réécrivons le potentiel extérieur :

$$\Phi^{\text{out}}(\mathbf{r}) = \Phi^{\text{app}}(\mathbf{r}) + \Phi^{\text{tore}}(\mathbf{r}) \quad (4.27)$$

où $\Phi^{\text{tore}}(\mathbf{r})$ représente la contribution du potentiel créé par le tore :

$$\begin{aligned} \Phi^{\text{tore}}(\mathbf{r}) = & \sqrt{f(q_1, q_2)} a E_0 \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} W_1 \\ & \cdot \left[Q_{1/2}^{m=0}(q_1^0) P_{1/2}^{m=0}(q_1) \sin(q_2) + \frac{W_2}{W_1} Q_{3/2}^{m=0}(q_1^0) P_{3/2}^{m=0}(q_1) \sin(2q_2) \right] \end{aligned} \quad (4.28)$$

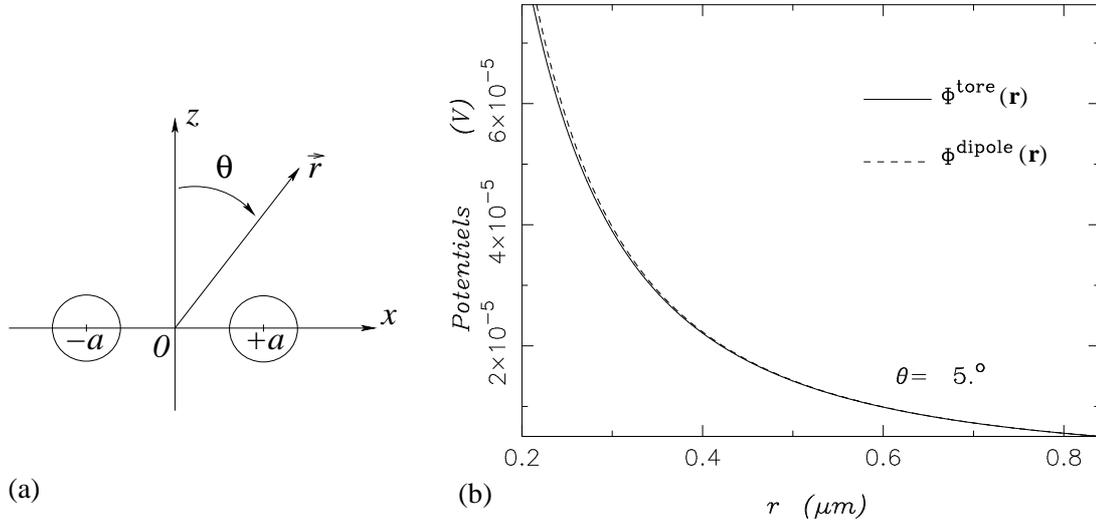


FIG. 4.4 – (a) Définition de l'angle θ par rapport au tore étudié. (b) Comparaison entre les potentiels créés par un tore (éq. 4.28) en or et par un dipôle équivalent situé l'origine (éq. 4.30 - 4.31), calculés le long de la droite $\theta = 5$ pour $r > R_{ext}$.

D'après la forme de ce potentiel, l'application du champ axial lève la dégénérescence sur les modes propres. Seul la solution impaire du mode pourra être excitée.

Numériquement, on vérifie que si r est supérieur au rayon extérieur du tore,

$$\Phi^{\text{tore}}(\mathbf{r}) \longrightarrow \Phi^{\text{dipole}}(\mathbf{r}) \quad (4.29)$$

où $\Phi^{\text{dipole}}(\mathbf{r})$ correspond au potentiel crée par un dipôle placé à l'origine du repère (Figure 4.4(b)) :

$$\Phi^{\text{tore}}(\mathbf{r}) \simeq \frac{p \cos \theta}{4\pi \varepsilon_0 \varepsilon_1 r^2} = \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}}{4\pi \varepsilon_0 \varepsilon_1 r^3} \quad (4.30)$$

\mathbf{p} correspond au moment dipolaire électrique situé à l'origine :

$$\mathbf{p} \simeq 4\pi \varepsilon_0 \varepsilon_1 v \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) \eta_z W_1}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \mathbf{E}_0 \quad (4.31)$$

où η_z est une fonction de q_1^0 . Elle est sans dimension et sa valeur est déduite numériquement lors du raccord (4.29). Le champ appliqué induit donc un moment dipolaire électrique proportionnel au champ. La polarisabilité α_z du tore est définie par :

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &= \varepsilon_0 \varepsilon_1 \alpha_z \mathbf{E}_0 \\ \alpha_z &= 4\pi v \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) \eta_z W_1}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \end{aligned} \quad (4.32)$$

Notre exposé montre que un tore placé dans un champ électrostatique axial est comparable, en première approximation, à un dipôle idéal. Dans le cadre d'un problème de diffusion ou d'extinction, le champ appliqué est une onde plane qui varie dans l'espace et dans le temps. En utilisant la même justification physique que dans le cas d'une sphère, la taille de la particule permet de remplacer le tore par son dipôle équivalent de moment dipolaire oscillant à la même fréquence que l'onde plane incidente. :

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &= \varepsilon_0 \varepsilon_1 \alpha_z \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t} \\ \alpha_z &= 4\pi v \frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \eta_z W_1}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \end{aligned} \quad (4.33)$$

Le champ diffusé peut être calculé à partir du dipôle induit, la section efficace de diffusion par un tore est alors donnée par :

$$C_{sca} = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha_z|^2 = \frac{2}{3} k^4 v^2 \left| \frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \eta_z W_1}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \right|^2 \quad (4.34)$$

Nous vérifions qu'elle est proportionnelle au carré du volume du tore v et varie en λ^{-4} . La section efficace d'extinction est calculé de façon similaire :

$$C_{ext} = C_{sca} + k \Im\{\alpha_z\} = C_{sca} + 4\pi k v \Im\left(\frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \eta_z W_1}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \right) \quad (4.35)$$

Elle est proportionnelle au volume de la particule. Le terme de diffusion est donc faible comparé à celui de l'extinction. Comme pour tout objet petit devant la longueur d'onde, l'extinction optique pour des nanotores est principalement dûe à l'absorption.

La présence de la relation de dispersion du mode propre impair d'ordre 1 $M = 0 N = 1$ aux dénominateurs de C_{ext} et C_{sca} montre que ces coefficients présentent une exaltation lorsque la fréquence de l'onde incidente correspond à la fréquence de ce mode propre.

4.2 Tore métallique dans un champ uniforme planaire

Nous allons maintenant appliquer la méthode précédente, au cas du champ électrostatique d'amplitude E_0 planaire, c'est-à-dire dirigé selon l'axe x du repère cartésien $\mathbf{E}_0 = E_0 \mathbf{e}_x$. D'après le développement de la coordonnée x sur les fonctions toroïdales

(éq. 2.99), le potentiel électrostatique Φ^{app} s'écrit :

$$\Phi^{\text{app}} = -E_0 x \quad (4.36)$$

$$= \frac{2\sqrt{2} a E_0}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=0}^{+\infty} (2 - \delta_{n,0}) Q_{n-1/2}^{m=1}(q_1) \cos(nq_2) \cos q_3 \quad (4.37)$$

Les symétries imposées par ce champ appliqué entraîne une dépendance des potentiels intérieur et extérieur du tore en $\cos q_3$ et en $\cos(nq_2)$, d'où :

$$\Phi^{\text{in}}(\mathbf{r}) = \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=0}^{+\infty} D_n Q_{n-1/2}^{m=1}(q_1) \cos(nq_2) \cos q_3 \quad (4.38)$$

$$\Phi^{\text{out}}(\mathbf{r}) = \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=0}^{+\infty} [A_n P_{n-1/2}^{m=1}(q_1) + B_n Q_{n-1/2}^{m=1}(q_1)] \cos(nq_2) \cos q_3 \quad (4.39)$$

La condition à l'infini, $\Phi \rightarrow \Phi^{\text{app}}$ pour $q_1 \rightarrow 0$, donne la valeur des constantes B_n :

$$B_n = B = E_0 \frac{2\sqrt{2}a}{\pi} \quad (4.40)$$

En appliquant la continuité des champs en $q_1 = q_1^0$, nous arrivons à une série que nous identifions en termes de $\cos q_2$. Nous arrivons à un système infini d'équations avec une infinité d'inconnues :

$$A_0 C_0^1 = -A_1 G_1^1 + B Z_0^1 - 2B K_1^1 \quad (4.41)$$

$$A_1 C_1^1 = -2A_0 G_0^1 - A_2 G_2^1 + 2B Z_2^1 - 2B K_0^1 - 2B_1 K_2^1$$

$$A_2 C_2^1 = -A_1 G_1^1 - A_3 G_3^1 + 2B Z_2^1 - 2B K_3^1 - 2B K_1^1$$

$$\text{etc...} \quad (4.42)$$

Dans le cas du champ appliqué axial, nous avons vu en étudiant la décomposition en série de la coordonnée z qu'il était possible de tronquer le système d'équations. Pour des tores dont le rapport épaisseur sur rayon intérieur était inférieur à environ 1.5, seuls deux termes subsistaient. Dans le même esprit, sur les figures 4.5, nous avons tracé les courbes relatives aux valeurs données par l'expression de x suivante :

$$x = -\frac{2\sqrt{2}a}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=0}^{n_{\text{max}}} (2 - \delta_{n,0}) Q_{n-1/2}^{m=1}(q_1) \cos(nq_2) \cos q_3 \quad (4.43)$$

pour q_2 compris entre 0 et π et pour différentes valeurs de q_1 (courbes en trait plein) : $q_1 = 5$ (figure a), $q_1 = 2$ (figures b et c), $q_1 = 0.1$ (figures c,d et f). Pour tracer ces

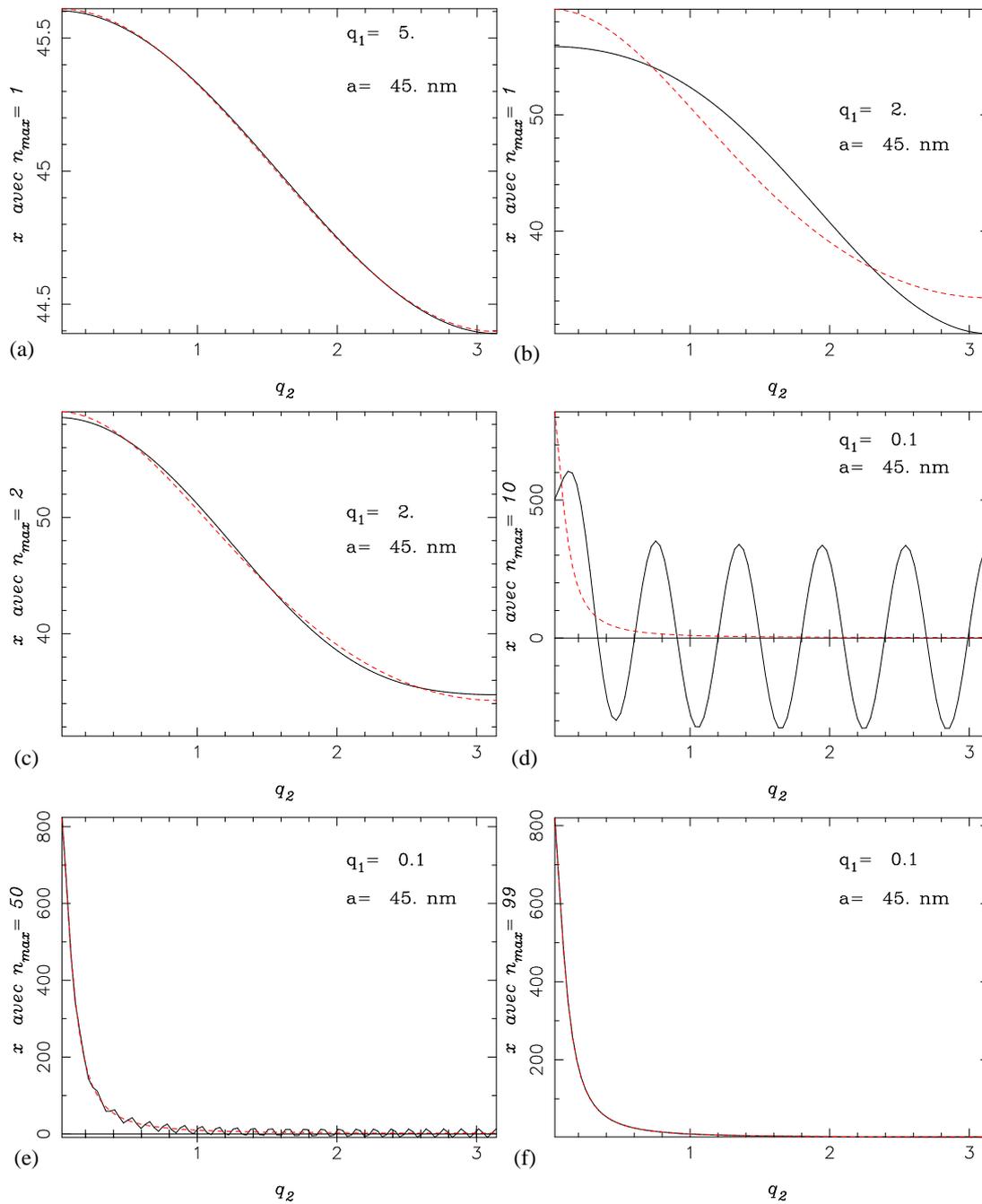


FIG. 4.5 – Valeurs exactes (traits interrompus) et valeurs approchées (traits continus) de la coordonnée z en fonction de q_1 , q_2 et n_{max} . Pour tracer ces courbes, nous avons pris $q_3 = 0$.

$d/R_{in} =$	0.5	1	1.5
$\cosh q_1^0 =$	5.	3.	2.33
$n = 0$	-0.505692809	-0.675321941	-0.795917439
$n = 1$	-0.0763352688	-0.171891144	-0.264133651
$n = 2$	$-9.62694949 \cdot 10^{-3}$	$-3.67279097 \cdot 10^{-2}$	$-7.39733112 \cdot 10^{-2}$
$n = 3$	$-1.13387857 \cdot 10^{-3}$	$-7.33803691 \cdot 10^{-3}$	$-1.93980885 \cdot 10^{-2}$
$n = 4$	$-1.28813499 \cdot 10^{-4}$	$-1.41479222 \cdot 10^{-3}$	$-4.91147512 \cdot 10^{-3}$

TAB. 4.2 – Valeurs de la fonction $Q_{n-1/2}^{m=1}(q_1^0)$ pour $n = 0,1,2,3,4$ évaluée pour $q_1^0 = 5., 3.$ et 2.33

courbes, nous avons choisi de prendre $q_3 = 0$. Nous avons également tracé sur ces mêmes figures, les courbes liées à l'expression $x = a \sinh(q_1) \cos(q_3)/f(q_1, q_2)$ (courbes en traits discontinus). Les mêmes conclusions que pour le développement de z s'imposent pour la coordonnée x . Plus un point sera éloigné du foyer a , plus la valeur de n_{max} devra être grande si on veut décrire correctement la coordonnée x à l'aide de la relation (4.43).

A partir du tableau 4.2, nous observons que pour des tores de rapport d/R_{in} inférieur à 1 environ, nous allons pouvoir poser $Q_{n-1/2}^{m=1}(q_1^0) = 0$ si $n > 1$. L'approximation des tores fins revient donc, dans le cas d'un champ appliqué planaire, à ne prendre en compte que les symétries $n = 0$ et $n = 1$. A l'intérieur du tore, le potentiel appliqué s'énonce alors :

$$\Phi^{\text{app}}(\mathbf{r}) = -E_0 x \simeq \frac{2\sqrt{2}a E_0}{\pi} \sqrt{f(q_1, q_2)} \sum_{n=0}^1 (2 - \delta_{n,0}) Q_{n-1/2}^{m=1}(q_1) \cos(nq_2) \cos q_3 \quad (4.44)$$

L'application d'un tel champ oblige alors à ne garder que les équations et les termes relatifs à ces symétries dans le système d'équations (4.41). Les fonctions C_n^1 , G_n^1 , Z_n^1 et K_n^1 sont posées nulles pour $n > 1$ dans le système d'équations (4.41). Ce système d'équations se réduit à :

$$A_0 C_0^1 = -A_1 G_1^1 + B (Z_0^1 - 2K_1^1) \quad (4.45)$$

$$A_1 C_1^1 = -2A_0 G_0^1 + 2B (Z_1^1 - K_0^1) \quad (4.46)$$

où les constantes A_0 et A_1 s'écrivent :

$$A_0 = B \frac{C_1^1 (Z_0^1 - 2K_1^1) - 2G_1^1 (Z_1^1 - K_0^1)}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \quad (4.47)$$

$$A_1 = B \frac{2C_0^1 (Z_1^1 - K_0^1) - G_0^1 (Z_0^1 - 2K_1^1)}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \quad (4.48)$$

Après factorisation de $(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)$, nous obtenons :

$$A_0 = a E_0 \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) W_0}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \quad (4.49)$$

$$A_1 = a E_0 \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) W_1}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \quad (4.50)$$

avec

$$\begin{aligned} W_0 = & \frac{2\sqrt{2}}{\pi} \left[\frac{dQ_{-1/2}^1}{dq_1} \right]_{q_1^0} \{C_1^1(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + 2G_1^1\} \\ & + \left. \frac{dQ_{1/2}^1}{dq_1} \right]_{q_1^0} \{2G_1^1(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + 2C_1^1\} \end{aligned} \quad (4.51)$$

$$\begin{aligned} W_1 = & \frac{2\sqrt{2}}{\pi} \left[\frac{dQ_{-1/2}^1}{dq_1} \right]_{q_1^0} \{G_0^1(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + 2C_0^1\} \\ & + \left. \frac{dQ_{1/2}^1}{dq_1} \right]_{q_1^0} \{2C_0^1(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + 2G_0^1\} \end{aligned} \quad (4.52)$$

Par ce calcul, la relation de dispersion des modes de plasmons $M = 1$ $N = 0$ apparait de manière explicite au dénominateur des coefficients A_0 et A_1 . Enfin, la dépendance en $\cos q_2$ indique que les modes excités possèdent la symétrie paire.

En réécrivant le potentiel extérieur :

$$\Phi^{\text{out}}(\mathbf{r}) = \Phi^{\text{app}}(\mathbf{r}) + \Phi^{\text{tore}}(\mathbf{r}) \quad (4.53)$$

où $\Phi^{\text{tore}}(\mathbf{r})$ représente la contribution au potentiel créée par le tore :

$$\begin{aligned} \Phi^{\text{tore}}(\mathbf{r}) = & \sqrt{f(q_1, q_2)} a E_0 \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} W_0 \\ & \left[Q_{-1/2}^{m=1}(q_1^0) P_{-1/2}^{m=1}(q_1) + \frac{W_1}{W_0} Q_{1/2}^{m=1}(q_1^0) P_{1/2}^{m=1}(q_1) \cos(q_2) \right] \cos(q_3) \end{aligned} \quad (4.54)$$

On montre numériquement que si $r \gg R_{\text{ext}}$ (Fig. 4.6) :

$$\Phi^{\text{tore}}(\mathbf{r}) \longrightarrow W_0 E_0 \left(\frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \right) \frac{v \eta_x \cos q_3}{r^2} \quad (4.55)$$

où η_x est une fonction de q_1^0 . Elle est sans dimension et sa valeur est déduite lors de ce raccord.

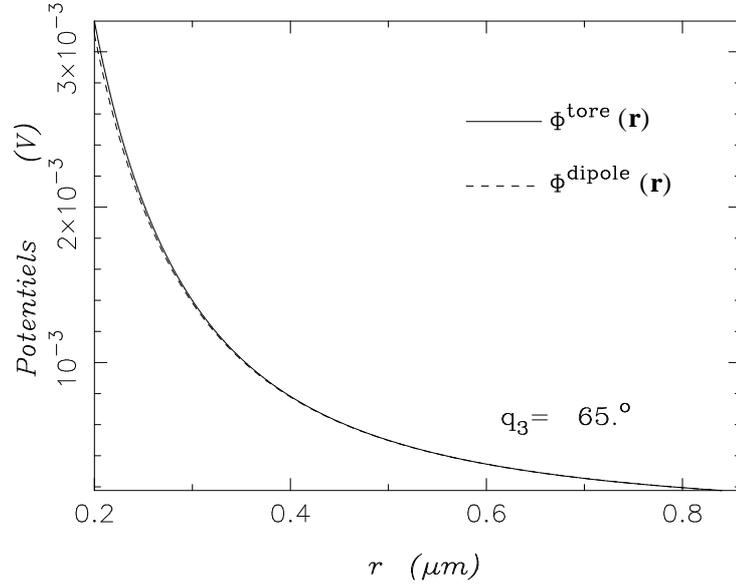


FIG. 4.6 – Comparaison entre les potentiels créés par un tore en or et par un dipôle équivalent situé l'origine, calculés le long de la droite $q_3 = 65^\circ$ pour $r > R_{ext}$.

Le champ extérieur au tore est la superposition du champ appliqué et d'un champ créé par un dipôle idéal placé à l'origine du repère, avec le moment dipolaire suivant : étudier de plus près les modes propres et

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &= \varepsilon_0 \varepsilon_1 \alpha_x \mathbf{E}_0 \\ \alpha_x &= 4\pi v \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) \eta_x W_0}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \end{aligned} \quad (4.56)$$

α_x est la polarisabilité du tore lorsque le champ appliqué est planaire.

Si le champ appliqué statique et uniforme est remplacé par une onde plane polarisée dans le plan de la particule, les expressions des sections efficaces sont données par :

$$C_{sca} = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha_x|^2 = \frac{2}{3} k^4 v^2 \left| \frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \eta_x W_0}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \right|^2 \quad (4.57)$$

$$C_{ext} = C_{sca} + k \Im\{\alpha_x\} = C_{sca} + 4\pi k v \Im\left(\frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \eta_x W_0}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \right) \quad (4.58)$$

La présence de la relation de dispersion du mode propre pair d'ordre 1 $M = 1$ $N = 0$ aux dénominateurs de C_{ext} et C_{sca} montre que ces coefficients vont présenter une exaltation lorsque la fréquence de l'onde incidente correspondra à la fréquence de ce mode propre.

4.3 Distribution des champs électriques

Pour les deux directions possibles du champ appliqué, nous avons trouvé des expressions pour le potentiel intérieur et extérieur au tore. De la même manière que les modes propres, il nous est possible d'en déduire des relations sur les composantes du champ électrique. Que se soit pour le potentiel intérieur ou extérieur de l'objet, nous déduisons les expressions des composantes du champ électrique de :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\nabla \cdot \Phi(\mathbf{r}) = -\nabla \cdot \Phi^{\text{app}}(\mathbf{r}) - \nabla \cdot \Phi^{\text{tore}}(\mathbf{r}) \quad (4.59)$$

$$= \mathbf{E}^{\text{app}}(\mathbf{r}) + \mathbf{E}^{\text{tore}}(\mathbf{r}) \quad (4.60)$$

Pour les tores fins, l'approximation que nous avons utilisée consiste à poser $\Pi = 1$. Les expressions des composantes de $\mathbf{E}^{\text{tore}}(\mathbf{r})$ obtenues sont les mêmes que celles relatives au modes propres. La forme de $U_n(q_2)$ ainsi que les valeurs de M et N sont prises en fonctions du champ appliqué.

Les composantes du champ intérieur au tore sont :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}^{\text{in}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_1} &= \frac{\sqrt{f(q_1, q_2)}}{a} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) e^{iMq_3} \\ &\times [S_n^M \{(1 - \delta_{n,N})U_{n-1}(q_2) + (1 - \delta_{n,N+\Pi})U_{n+1}(q_2)\} - T_n^M U_n(q_2)] \end{aligned} \quad (4.61)$$

avec

$$T_n^M = \frac{1}{2} Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) \sinh q_1 + \frac{dQ_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1)}{dq_1} \cosh q_1 \quad (4.62)$$

$$S_n^M = \frac{\sigma_n}{2} \frac{dQ_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1)}{dq_1} \quad (4.63)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}^{\text{in}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_2} &= \frac{\sqrt{f(q_1, q_2)}}{a} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) e^{iMq_3} \\ &\times \left[\frac{2n-1}{4(n-1)} U'_{n-1}(q_2)(1 - \delta_{n,N}) + \frac{2n + \sigma_n}{4(n+1)} U'_{n+1}(q_2)(1 - \delta_{n,N+\Pi}) - \cosh q_1 U'_n(q_2) \right] \end{aligned} \quad (4.64)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{(M,N;\Pi)}^{\text{in}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_3} &= \frac{iM \sqrt{f(q_1, q_2)}}{a \sinh q_1} \sum_{n=N}^{N+\Pi} A_n^M P_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1^0) Q_{n-\frac{1}{2}}^M(q_1) e^{iMq_3} \\ &\times \left[\frac{\sigma_n}{2} U_{n-1}(q_2)(1 - \delta_{n,N}) + \frac{1}{2} U_{n+1}(q_2)(1 - \delta_{n,N+\Pi}) - \cosh q_1 U_n(q_2) \right] \end{aligned} \quad (4.65)$$

Si le champ appliqué est axial, nous avons $U_n(q_2) = \sin(nq_2)$ et $M = 0$ et $N = 1$. Les expressions de A_1 et A_2 ont été déjà trouvées précédemment :

$$\begin{aligned} A_1 &= a E_0 \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) A'_1}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \\ A_2 &= a E_0 \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) A'_2}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \end{aligned}$$

Si le champ appliqué est planaire, nous avons $U_n(q_2) = \cos(nq_2)$, $M = 1$, $N = 0$ et les expressions de A_1 et A_2 suivantes :

$$\begin{aligned} A_0 &= a E_0 \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) A'_0}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \\ A_1 &= a E_0 \frac{(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) A'_1}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \end{aligned}$$

Pour obtenir les composantes extérieures au tore, il suffit d'échanger les différentes fonctions $Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1)$ par les fonctions $P_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1)$.

4.4 Conclusion

Comparée à la méthode de Love [70], la méthode de résolution du système d'un champ électrique appliqué à un tore exposée dans ce chapitre possède plusieurs avantages. Premièrement, elle s'applique aux deux orientations possible du champ : planaire ou axiale. Deuxièmement, elle permet de trouver facilement des expressions pour les sections efficaces de diffusion et d'extinction que nous avons reportés en annexe D.

Toutefois, les expressions que nous avons obtenues ne sont valables que pour des tores fins. Pour des tores plus épais, il est nécessaire de prendre en compte un nombre plus important de symétries selon q_2 dans le développement des champs électriques. Les expressions qui en découlent sont alors beaucoup plus complexes mais restent solubles puisque liées à un critère définissant le nombre de symétrie selon q_2 à prendre en compte.

Nous avons choisi de limiter notre étude aux tores présentant des rapports d/R_{in} inférieurs à 1 limitant ainsi le nombre de symétries selon q_2 à considérer. Nous avons vu qu'en appliquant cette approximation, les relations de dispersion d'ordre 1 apparaissent alors explicitement dans les expressions des sections efficaces. Dans le chapitre suivant, nous chercherons les fréquences de ces modes propres par la résolution numérique de leurs relations de dispersion.

Chapitre 5

Plasmons de surface de nanotores métalliques

Sur la base du travail analytique du chapitre 3 qui établit les relations de dispersion des plasmons d'un tore, ce chapitre étudie les modes plasmons de cette particule. Les fréquences des plasmons du tore dépendent de la nature du métal et de la taille du tore. La nature du métal constituant le tore est restituée par la fonction diélectrique $\varepsilon_2(\omega)$, tandis que les dimensions du tore définissent la valeur du paramètre q_1^0 .

L'étude des propriétés optiques d'un nanotore métallique fin menée au chapitre précédent, montre que les relations de dispersion de deux modes propres d'ordre 1 apparaissent explicitement dans les expressions des sections efficaces. Après la description des modèles de fonction diélectrique de l'au que nous allons utiliser, nous détaillerons les fréquences des modes propres d'ordre 1 pour des tores en Au. Ces fréquences obtenues, nous pourrions étudier la structure des modes afin de dégager les répartitions des charges de polarisation ainsi que les directions du champ électrique associées à chaque. Ces informations permettront de calculer les moments dipolaires électrique et magnétique soutenus par les différentes catégories de modes qui seront identifiées.

La constante q_1^0 est reliée aux rayons intérieur et extérieur par la relation (2.23) permettant de définir la surface du tore. Toutefois, pour que la définition des dimensions d'un tore en coordonnées toroïdales soit complète, il est nécessaire d'introduire le paramètre a car q_1^0 est sans dimension. Cependant, dans le contexte de l'approximation non-retardée, a n'intervient pas dans les relations de dispersion. Des tores possédant des rapports d/R_{in} (épaisseur sur rayon intérieur) égaux mais de diamètres extérieurs différents, vont avoir, d'après nos relations, les mêmes fréquences de résonances. Comme discuté dans le chapitre 1, l'approximation non retardée ne restitue la dépendance des fréquences de résonances que dans le régime microscopique. Pour que les valeurs des fréquences que nous allons

calculer soient réalistes, il faut donc que la taille de la particule soit très inférieure à la longueur d'onde λ . Fixant λ dans le domaine optique, le diamètre général des tores que nous allons étudier doivent donc être inférieur à 200 nm. Notons que très récemment, Daniel Köller et Andreas Hohenau de l'Université de Graz (Autriche) ont pu réaliser par lithographie électronique, des anneaux possédant des diamètres extérieurs inférieurs à 150 nm (d compris entre 20 et 30 nm, et R_{in} compris entre 24 et 40 nm).

5.1 Fonction diélectrique des métaux nobles

Dans le domaine optique, l'allure générale des fonctions diélectriques des métaux est restituée par le modèle de Drude. Cependant, les dérivations par rapport aux données expérimentales restent trop importantes en valeurs absolues. L'utilisation du modèle de Drude permet de dégager les tendances générales des propriétés optiques des métaux mais ne peut être utilisé en pratique lorsque les aspects quantitatifs deviennent cruciaux. Il est alors plus efficace de s'appuyer sur les valeurs expérimentales de la fonction diélectrique. Il existe de nombreux ouvrages dans lesquels les valeurs des fonctions diélectriques des métaux sont tabulées. Citons, entre autre, les ouvrages de Palik [101], et Aspnes [102] ainsi que l'article de P. B. Johnson et R. W. Christy publié en 1972 [103].

Dans un premier temps, nous avons choisi d'utiliser le modèle de Drude du fait de sa simplicité et de son usage important dans de nombreuses publications. De plus, son utilisation dans les relations de dispersion trouvées dans le précédent chapitre, nous permettra de comparer les fréquences des modes de plasmon d'un tore d'or, avec les fréquences des modes d'un anneau d'or estimées à partir du modèle exposé dans le chapitre 1. Conscient de la limite de cette description pour les fonctions diélectriques, nous utiliserons des valeurs expérimentales lors de la comparaison avec les résultats expérimentaux.

Dans le modèle de Drude, les électrons de valence du métal sont des particules classiques libres de se mouvoir. En outre, les électrons sont considérés indépendants (les interactions entre eux sont négligées). La fonction diélectrique d'un métal se construit alors de l'équation du mouvement d'un électron libre :

$$m_e \frac{\partial^2 \mathbf{r}}{\partial t^2} + m_e \gamma \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} = e \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t} \quad (5.1)$$

où m_e est la masse effective d'un électron, e est la charge de l'électron et γ est une constante d'amortissement. La résolution de cette équation donne le déplacement \mathbf{r} de l'électron par

rapport à sa position initiale lorsqu'il est soumis à un champ extérieur $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}$. Le moment dipolaire induit est donné par $\mathbf{p} = e\mathbf{r}$ (e : charge de l'électron). Pour n électrons par unité de volume, la densité de polarisation s'écrit $\mathbf{P} = n\mathbf{p}$. Si le milieu est isotropique, la fonction diélectrique $\varepsilon_{metal}(\omega)$ est :

$$\varepsilon_{metal}(\omega) = 1 + |\mathbf{P}|/(\varepsilon_0|\mathbf{E}|) \quad (5.2)$$

$$= 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega + i\gamma\omega} \quad (5.3)$$

Lorsque le gaz d'électrons est soumis à un champ électrique oscillant au cours du temps, il peut supporter des ondes longitudinales, à une fréquence angulaire dite de "plasma". Cette dernière est notée ω_p . Cette fréquence est proportionnelle à la densité d'électrons dans le métal (n), à la charge et à la masse d'un électron.

$$\omega_p = \frac{ne^2}{m_e \varepsilon_0} \quad (5.4)$$

Les données exposées dans les différents ouvrages sont très souvent différentes. Les méthodes d'investigation utilisées ainsi que la méthode de préparation des échantillons du métal étudié sont souvent les causes de ces différences. Dans cette étude, nous avons choisi d'employer les valeurs tabulées dans l'ouvrage de Palik [101] car l'expérience a montré qu'elles sont compatibles avec les méthodes de préparation utilisées habituellement dans le contexte de la plasmonique (évaporation thermique ou bombardement d'électrons). Sur la figure 5.1, nous avons représentés la partie réelle (trait plein) et imaginaire (trait interrompu) de la fonction diélectrique de l'Au en fonction de ω/c . Pour permettre une comparaison avec le modèle de Drude, nous avons représenté sur la même figure la valeur de la partie réelle de la fonction diélectrique de l'Au calculé à partir de la relation (5.3)

La fréquence ω_p est la fréquence pour laquelle la fonction diélectrique du métal est nulle :

$$\varepsilon_{metal}(\omega_p) = 0 \quad (5.5)$$

La valeur de ω_p est caractéristique de chaque métal. La définition de ω_p (eq. 5.4) dans le modèle de Drude est relativement satisfaisante pour calculer $\varepsilon(\omega)$ aux fréquences infrarouges. Cependant, aux fréquences optiques, cette définition est défailante, la valeur de ω_p étant beaucoup trop faible. Afin de corriger cela, nous ajusterons la valeurs de cette fréquence à la valeur expérimentale approximative de ω à laquelle la partie réelle de $\varepsilon(\omega)$ s'annule. Pour l'Au, ω_p/c est égale à $27.8 \mu m^{-1}$.

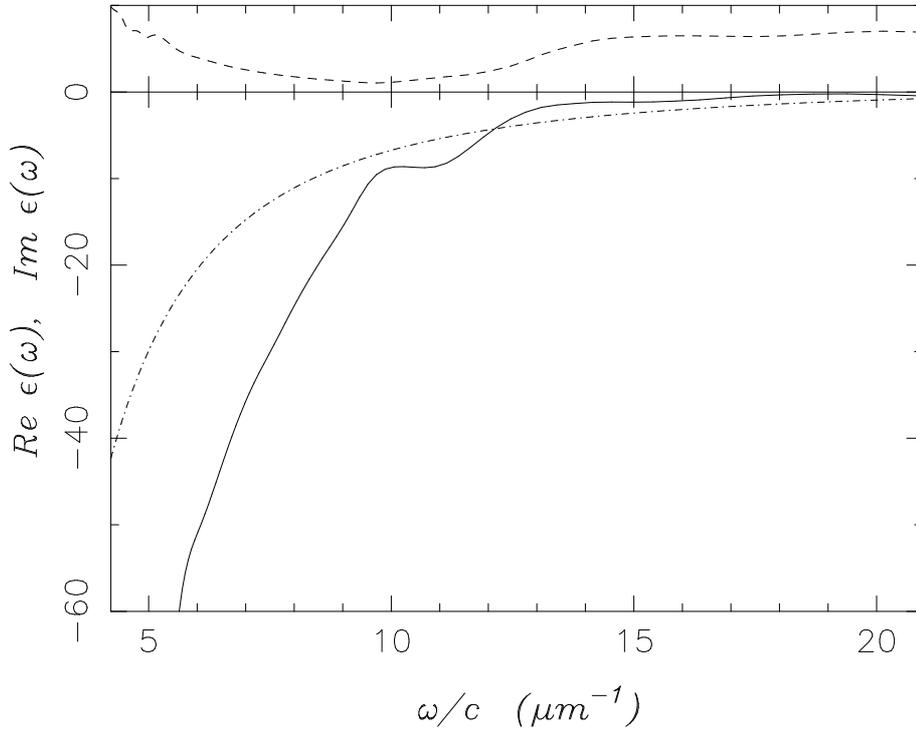


FIG. 5.1 – *Fonction diélectrique de l’Au : modèle de Drude et valeurs expérimentales.* Parties réelle $Re \epsilon(\omega)$ (trait plein) et imaginaire $Im \epsilon(\omega)$ (trait interrompu) de la fonction diélectrique de l’Au en fonction de ω/c issues des données tabulées par Palik [101]. La partie réelle du modèle de Drude est représentée par la courbe interrompue et pointillée (-.-).

En comparant les différentes courbes de la figure 5.3, nous voyons que le modèle simple de Drude est satisfaisant pour décrire la fonction diélectrique de l’Au. Cependant, il n’est pas capable de rendre compte de certaines variations des valeurs de la partie réelle de la fonction diélectrique $\epsilon(\omega)$ présentes dans les données expérimentales. Ce modèle surévalue (en valeur absolue) la partie réelle de $\epsilon(\omega)$ pour des fréquences supérieures à $12 \mu m^{-1}$, alors qu’il les sous-évalue pour des fréquences inférieures à cette dernière.

Pour des fréquences plus grandes que ω_p , les oscillations, appelées *plasmons de volume*, sont transverses. La partie réelle de la fonction diélectrique est alors positive ce qui autorise une transmission à travers le métal. Pour des fréquences inférieures à ω_p , les électrons ne peuvent supporter des modes de volume ce que restitue le signe négatif de $\Re \epsilon_{metal}(\omega)$. La réflectivité du métal est alors très élevée. Dans ce cas, c’est-à-dire en l’absence de modes de volume, il existe des oscillations du gaz d’électrons à la surface du métal. Ces modes se propagent le long de la surface métallique et décroissent exponentiellement à partir de

l'interface. Ces modes, du fait de leur localisation, sont appelés *plasmons de surface*. Les modes de plasmons de surface doivent donc se trouver en dessous de cette fréquence ω_p .

5.2 Évaluation des relations de dispersion

Les relations de dispersion des plasmons de surface d'un tore métallique sont déterminées en extrayant numériquement les fréquences propres des modes de surface correspondant aux zéros des relations de dispersion [104]. Celles-ci correspondent aux zéros des relations (3.34) et (3.42). Dans le chapitre précédent, nous avons choisi de travailler sur des tores fins, ce qui nous impose un facteur de forme inférieur à 1. Nous avons montré dans le chapitre 4 que pour ces tores, seuls certains modes d'ordre 1 vont intervenir dans les propriétés optiques des tores fins. Nous avons donc procédé à l'évaluation des relations de dispersion des modes propres d'ordre 1 à l'aide de l'équation (3.33) :

$$C_{N+1}^M C_N^M - (1 + \delta_{0,N}) G_N^M G_{N+1}^M = 0 \quad (5.6)$$

Cependant, il est intéressant d'évaluer les fréquences de ces modes propres pour une plus large plage de rapports d/R_{in} afin de vérifier les comportements asymptotiques de ces relations. C'est pourquoi, nous avons cherché ces fréquences pour des rapports d/R_{in} compris entre 0.1 et 40. A noter qu'il n'est guère possible d'évaluer les fréquences pour un tore de rapport d/R_{in} inférieur à 0.1. En dessous de ce seuil, les valeurs correspondantes au paramètre q_1^0 ne permettent plus de faire converger les sous-routines qui évaluent les fonctions toroïdales (voir chapitre 2).

5.2.1 Tore en Au dans le vide

Les figures 5.2 montrent les courbes de dispersion des premières branches des modes ($M = 0$ à 3, (a) : $N = 0$, (b) : $N = 1$) d'un tore en Au dont les valeurs de la partie réelle de la fonction diélectrique proviennent du modèle de Drude (eq. 5.3). Le tore est placé dans un milieu homogène caractérisé par $\varepsilon_1 = 1$. Pour chaque couple (M, N) , un tore possède deux fréquences de résonance qui, en fonction de d/R_{in} , forment deux branches. Nous utiliserons la convention suivante afin de différencier les deux fréquences : $\omega_{M,N}^+$ représentera la fréquence de la branche supérieure du mode (M, N) et $\omega_{M,N}^-$, la fréquence de la branche inférieure.

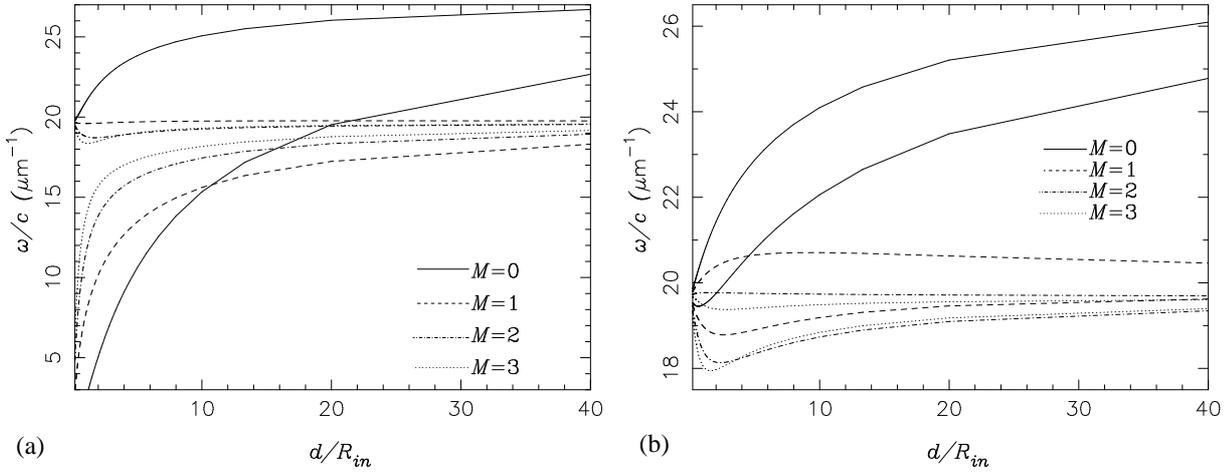


FIG. 5.2 – Relations de dispersion de la géométrie du tore : branches des modes $N = 0$ (a) et $N = 1$ (b) pour $M = 0, 1, 2, 3$, en fonction du rapport d/R_{in} . La fonction diélectrique de l’Au correspond au modèle de Drude et le milieu extérieur est l’air.

Dans la limite des grandes valeurs de d/R_{in} , deux comportements sont observés en fonction de M . Si $M = 0$, les branches $\omega_{M=0,N}^+$ et $\omega_{M=0,N}^-$ convergent vers la fréquence de plasma $\omega_p/c = 27.8 \mu\text{m}^{-1}$. Cette fréquence correspond au mode propre de volume de l’Au massif. Si M est supérieur ou égal à 1, les branches convergent vers la fréquence $\omega_s/c = 19.66 \mu\text{m}^{-1}$ définie par $\varepsilon(\omega_s) = -\varepsilon_1 = -1$. Cette fréquence correspond aux plasmons de surface associés à une interface Au-air dans l’approximation non-retardée [105]. Lorsque d/R_{in} tend vers de grandes valeurs, l’épaisseur du tore devient très grande par rapport au rayon intérieur. La forme globale du tore tend alors vers d’un bloc de métal. Les fréquences des modes propres du tore plongé dans un milieu extérieur diélectrique tendent donc vers celles d’une interface plane Au-diélectrique.

Pour des faibles valeurs de d/R_{in} , chaque branche converge vers la fréquence spécifique ω_s/c précédemment définie, excepté les branches des basses fréquences des modes $N = 0$ qui apparaissent converger vers zéros (fig. 5.2(a)).

Pour $N = 1$, les fréquences des branches inférieures sont plus petites que ω_s/c , tandis que les fréquences des branches supérieures sont plus élevées que ω_s/c .

Si la partie réelle de la constante diélectrique de l’Au est maintenant décrite par les données expérimentales [101], nous obtenons les courbes de dispersion des figures 5.3 (a) et (b). Nous observons que les comportements aux limites de chacune des branches restent semblables à ceux obtenus avec le modèle de Drude. Le principal changement entre les

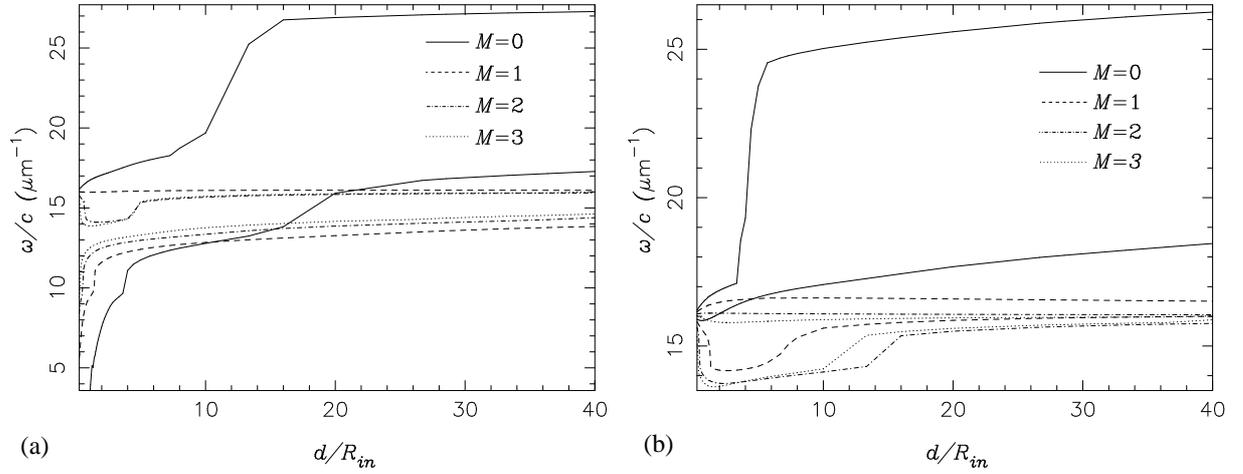


FIG. 5.3 – Relations de dispersion de la géométrie du tore : fréquences de modes $N = 0$ (a) et $N = 1$ (b) pour $M = 0, 1, 2, 3$, en fonction du rapport d/R_{in} . La fonction diélectrique de l’Au correspondent aux données expérimentales [101] et le milieu extérieur est l’air.

deux types de données décrivant $\varepsilon_2(\omega)$ provient du changement de la valeur de la fréquence ω_s/c . Avec les données expérimentales la fréquence ω_s/c prend la valeur $15.2 \mu\text{m}^{-1}$.

Pour $N = 0$, les branches inférieures $\omega_{M,N=0}^-$ dépendent fortement du facteur de forme du tore. Les branches supérieures $\omega_{M,N=0}^+$ sont moyennement sensibles à la valeur d/R_{in} .

Pour $N = 1$, les branches sont toutes comprises entre 13 et $17 \mu\text{m}^{-1}$, exception faite des branches relatives à $M = 0$.

L’utilisation des données expérimentales de $\varepsilon_2(\omega)$ entraîne également des variations abruptes des courbes, notamment pour des tores de rapport d/R_{in} compris entre 1 et 20. Ces variations proviennent principalement des oscillations de la valeur de la partie réelle de la fonction diélectrique expérimentale de l’Au, pour ω/c compris entre 15 et $24 \mu\text{m}^{-1}$ (fig. 5.2). Elles mettent en évidence la sensibilité des fréquences des modes propres du tore à la valeur de la fonction diélectrique du métal.

5.2.2 Tore en Au intégré dans du verre

Les techniques de lithographie moderne par faisceau d’électrons permettent de réaliser des structures métalliques très complexes. Cependant, pour des raisons pratiques, les objets réalisés se trouvent souvent sur une surface de verre ($\varepsilon_{verre} = \varepsilon_1 = 2.25$). Dans le calcul des relations de dispersion du tore, la présence d’une surface ne peut être prise en compte puisque le milieu extérieur doit être nécessairement homogène. Une méthode consiste à

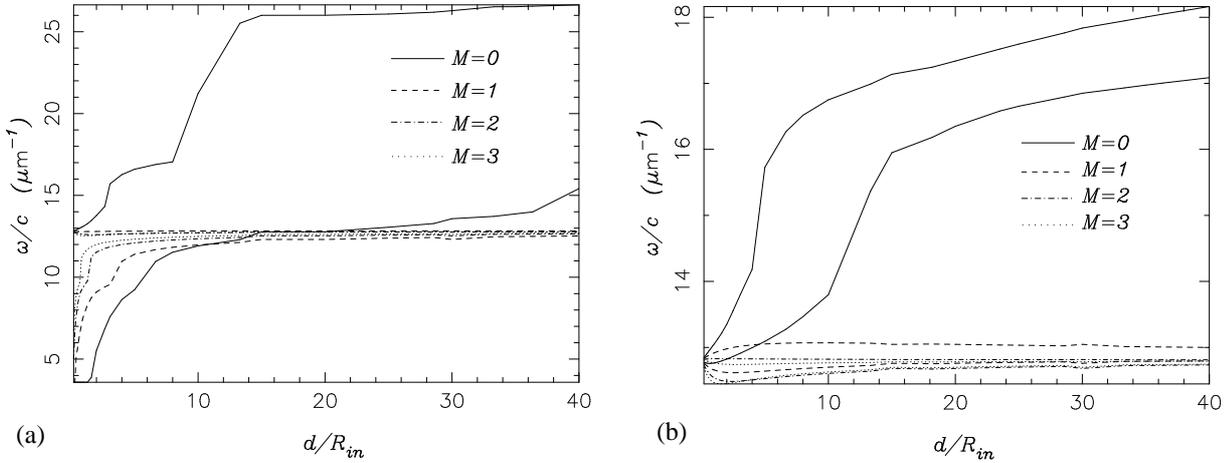


FIG. 5.4 – Relations de dispersion dans la géométrie du tore : fréquences de modes $N = 0$ (a) et $N = 1$ (b) pour $M = 0,1,2,3$, en fonction du rapport d/R_{in} . La fonction diélectrique de l’Au correspondent aux données expérimentales et le verre constitue le milieu extérieur.

considérer le système substrat et superstrat comme étant un milieu homogène d’indice optique effectif compris entre les valeurs des indices du substrat et du superstrat. Cette valeur est généralement ajustée pour faire coïncider un résultat théorique à un résultat expérimental [71]. Pour fixer la limite extrême du domaine d’ajustement de ε_1 , nous allons considérer que le cas du tore en Au intégré dans le verre. Il est bien connu que la modification de ε_1 provoque un ”red-shift” des fréquences des modes propres de tout type de plasmon de surface [106, 107].

La figure 5.4 reporte les fréquences des modes $N = 0$ (a) et $N = 1$ (b) pour $M = 0,1,2,3$ calculées en posant $\varepsilon_2(\omega)$ égal aux données expérimentales et $\varepsilon_1 = \varepsilon_{verre} = 2.25$. Comme attendu, toutes les branches subissent un red-shift tandis que le comportement général est conservé si on tient compte du fait la définition de la fréquence particulière ω_s/c devient $\varepsilon(\omega_s) = -\varepsilon_1 = -2.25$. L’ensemble des fréquences, exceptées les fréquences basses des modes $N = 0$, convergent alors vers la valeur de $\omega_s/c = 12.8 \mu\text{m}^{-1}$.

5.3 Distributions spatiales des modes propres

Pour représenter des exemples de distributions spatiales des modes propres, nous allons considérer un tore de rayon intérieur de 17 nm et d’épaisseur 8 nm, ce qui correspond à un facteur de forme $d/R_{in} = 0.47$. Les cartes de potentiel $\phi_{M,N}(\mathbf{r})$ sont calculées à partir des relations (3.48) et (3.49), en posant $\Pi = 1$. Elles sont calculées aux fréquences du mode

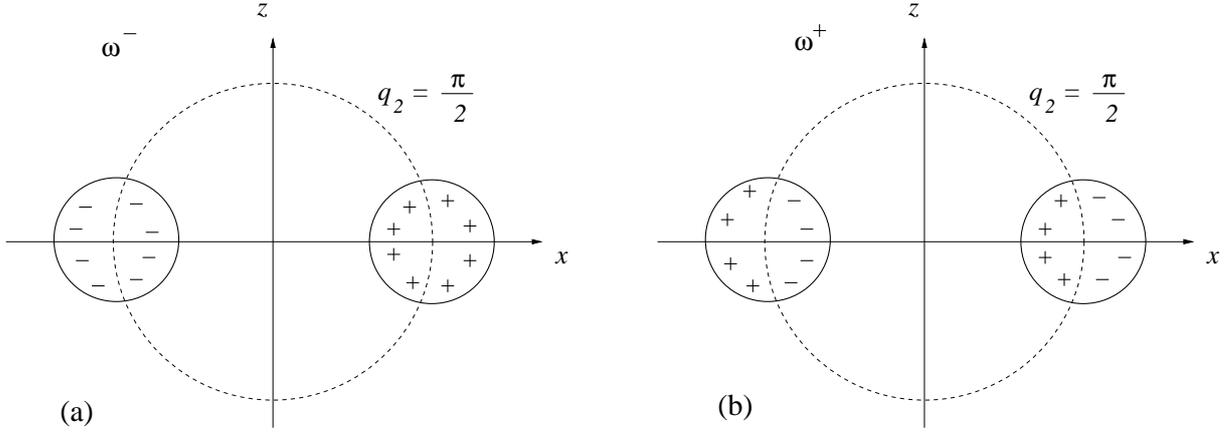


FIG. 5.5 – Répartition schématique du potentiel dans le plan xz pour le mode $M = 1$ $N = 0$. (a) : cas de la branche inférieure $\omega_{M=1,N=0}^-$. (b) : cas de la branche supérieure $\omega_{M=1,N=0}^+$.

et suivant la parité de celui-ci. De même, les cartes de champs électriques sont calculées numériquement à partir des expressions (3.65), (3.68) et (3.69). Les cartes de potentiels et de champs sont reportées en annexe B.

Pour les modes $N = 0$, les distributions de potentiel dans le tore correspondent à celles anticipées lors de l'étude des modes d'un anneau (voir section 1.3.10). Les branches inférieures $\omega_{M,N=0}^-$ sont caractérisées par une distribution symétrique des charges dans une section du tore. Rappelons que les modes d'ordre 1 possèdent une dépendance selon $\cos Nq_2$ et une dépendance en $\cos(N + 1)q_2$. Nous en déduisons que la répartition du potentiel pour $\omega_{M,N=0}^-$ est principalement dûe au terme de dépendance en $\cos(N = 0)q_2$ dans l'expression du potentiel (figure 5.5(a)). Pour les branches supérieures, le terme de dépendant de $\cos(N + 1 = 1)q_2$ dans le potentiel est dominant. Il en résulte une distribution antisymétrique du potentiel (figure 5.5(b)).

Les modes $N=1$ peuvent être pairs ($U_N(q_2) = \cos Nq_2$) ou impairs ($U_N(q_2) = \sin Nq_2$), et sont dégénérés. Le potentiel de chaque mode possède deux termes dépendant de q_2 : $U_{N=1}(q_2)$ et $U_{N+1=2}(q_2)$. Sur les cartes de potentiel, nous constatons que la fréquence basse $\omega_{M,N=1}^-$ correspond à une distribution où le terme contenant $U_{N=1}(q_2)$ est dominant (figures 5.6(a) et 5.7(a)), tandis que pour la fréquence haute $\omega_{M,N=1;\Pi=1}^-$, le terme contenant $U_{N+1=2}(q_2)$ détermine la distribution spatiale des charges dans une section du tore (figures 5.6(b) et 5.7(b)).

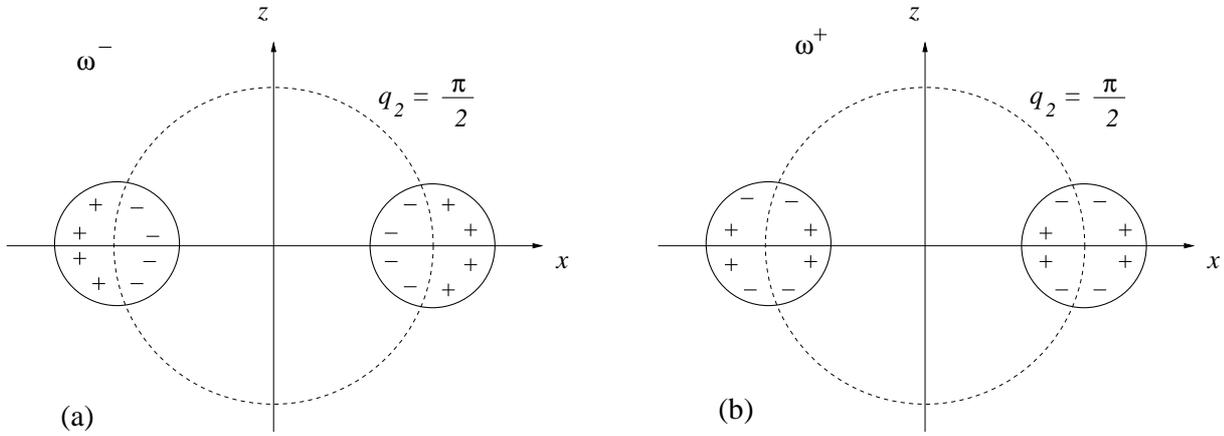


FIG. 5.6 – Répartition schématique du potentiel dans le plan xz pour le mode pair $M = 1$ $N = 1$. (a) : cas de la branche inférieure $\omega_{M=1,N=1}^-$. (b) : cas de la branche supérieure $\omega_{M=1,N=1}^+$.

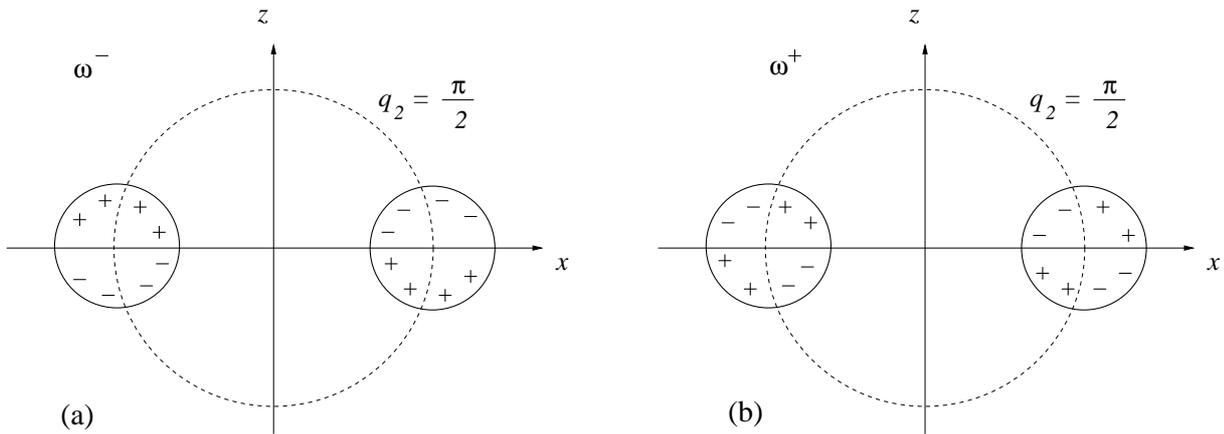


FIG. 5.7 – Répartition schématique du potentiel dans le plan xz pour le mode impair $M = 1$ $N = 1$. (a) : cas de la branche inférieure $\omega_{M=1,N=1}^-$. (b) : cas de la branche supérieure $\omega_{M=1,N=1}^+$.

5.4 Calcul des moments dipolaires des plasmons du tore

Rappelons que les moments dipolaires liés à un mode propre du tore métallique peuvent être calculés en utilisant les relations suivantes [20]:

$$\mathbf{p} = -\frac{1}{i\omega} \int d\mathbf{r} \mathbf{J}(\mathbf{r}) \quad (5.7)$$

$$\mathbf{m} = \frac{1}{2c} \int d\mathbf{r} [\mathbf{r} \times \mathbf{J}(\mathbf{r})] \quad (5.8)$$

L'absence de charge et de courant extérieurs signifie que la réponse du matériau est restituée par la fonction diélectrique du métal $\varepsilon(\mathbf{r},\omega)$ qui constitue le tore. Pour des champs possédant une dépendance temporelle harmonique en interaction avec une particule placée dans un matériau homogène et isotrope caractérisé par ε_1 , le courant à considérer est donc le courant de polarisation $\mathbf{J}(\mathbf{r})$ exprimé ici en unité CGS afin de pouvoir comparer les moments dipolaires \mathbf{p} et \mathbf{m} :

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}) = \frac{i\omega}{4\pi} [\varepsilon(\mathbf{r},\omega) - \varepsilon_1] \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (5.9)$$

La présence du terme $[\varepsilon(\mathbf{r},\omega) - \varepsilon_1]$ limite les intégrales au volume du tore. En coordonnées toroïdales, ces intégrales s'écrivent sous la forme suivante:

$$\mathbf{p}_{M,N;\Pi} = - \int_{q_1^0}^{+\infty} dq_1 \int_0^{2\pi} dq_2 \int_0^{2\pi} dq_3 h(q_1, q_2) \mathbf{E}_{M,N;\Pi}^{\text{in}}(q_1, q_2, q_3) \quad (5.10)$$

$$\mathbf{m}_{M,N;\Pi} = \frac{i\omega}{2c} \int_{q_1^0}^{+\infty} dq_1 \int_0^{2\pi} dq_2 \int_0^{2\pi} dq_3 h(q_1, q_2) \mathbf{r} \times \mathbf{E}_{M,N;\Pi}^{\text{in}}(q_1, q_2, q_3) \quad (5.11)$$

avec

$$h(q_1, q_2) = \frac{\varepsilon(\omega) - \varepsilon_1}{4\pi} \left(\frac{a}{f(q_1, q_2)} \right)^3 \sinh q_1 \quad (5.12)$$

$\mathbf{E}_{M,N;\Pi}^{\text{in}}(q_1, q_2, q_3)$ correspond au champ électrique du mode $(M, N; \Pi)$ à l'intérieur du tore. Ses composantes sont données par les relations (3.58), (3.62) et (3.64):

$$\mathbf{E}_{M,N;\Pi}^{\text{in}}(q_1, q_2, q_3) = E_{q_1}(q_1, q_2) e^{iMq_3} \mathbf{e}_{q_1} + E_{q_2}(q_1, q_2) e^{iMq_3} \mathbf{e}_{q_2} + E_{q_3}(q_1, q_2) e^{iMq_3} \mathbf{e}_{q_3} \quad (5.13)$$

où \mathbf{e}_{q_1} , \mathbf{e}_{q_2} et \mathbf{e}_{q_3} sont les vecteurs unitaires en coordonnées toroïdales (équations (2.30), (2.31) et (2.32)).

Le calcul aboutit aux énoncés suivants des moments dipolaires électrique et magnétique :

$$\begin{aligned} \mathbf{p}_{M,N;\Pi} &= -\frac{1}{2} \int_{q_1^0}^{+\infty} dq_1 \int_0^{2\pi} dq_2 \int_0^{2\pi} dq_3 h(q_1, q_2) e^{iMq_3} \{ [\beta E_{q_1}(q_1, q_2) + \kappa E_{q_2}(q_1, q_2)] \mathbf{e}_z \\ &+ e^{iq_3} [\kappa E_{q_1}(q_1, q_2) + \beta E_{q_2}(q_1, q_2) - i E_{q_3}(q_1, q_2)] (\mathbf{e}_x + i \mathbf{e}_y) \} \end{aligned} \quad (5.14)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{m}_{M,N;\Pi} &= -\frac{ia}{4} \frac{\omega}{c} \int_{q_1^0}^{+\infty} dq_1 \int_0^{2\pi} dq_2 \int_0^{2\pi} dq_3 h(q_1, q_2) e^{iMq_3} \{ \varrho E_{q_3}(q_1, q_2) \mathbf{e}_z \\ &+ e^{iq_3} [\nu E_{q_1}(q_1, q_2) - \tau E_{q_2}(q_1, q_2) - i\gamma E_{q_3}(q_1, q_2)] (i \mathbf{e}_x - \mathbf{e}_y) \} \end{aligned} \quad (5.15)$$

avec

$$\nu = \gamma \cosh q_1 = \frac{\cosh q_1 \sin q_2}{f(q_1, q_2)} \quad (5.16)$$

$$\varrho = \frac{\sinh q_1}{f(q_1, q_2)} \quad (5.17)$$

$$\tau = \varrho \cos q_2 \quad (5.18)$$

D'après les relations (5.14) et (5.15), deux cas sont à envisager : $M \neq 0$ et $M = 0$.

Calculs des moments dipolaires si $M \neq 0$:

Considérons dans un premier temps le cas des modes $M \neq 0$. L'intégration sur q_3 dans les équations (5.14) et (5.15) donne alors :

$$\begin{aligned} \mathbf{p}_{M,N;\Pi} &= -\pi (\mathbf{e}_x + i \mathbf{e}_y) \delta_{M,1} \int_{q_1^0}^{+\infty} dq_1 \int_0^{2\pi} dq_2 h(q_1, q_2) \\ &[\kappa E_{q_1}(q_1, q_2) + \beta E_{q_2}(q_1, q_2) - i E_{q_3}(q_1, q_2)] \end{aligned} \quad (5.19)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{m}_{M,N;\Pi} &= -\frac{ia\pi}{2} \frac{\omega}{c} (i \mathbf{e}_x - \mathbf{e}_y) \delta_{M,1} \int_{q_1^0}^{+\infty} dq_1 \int_0^{2\pi} dq_2 h(q_1, q_2) \\ &[\nu E_{q_1}(q_1, q_2) - \tau E_{q_2}(q_1, q_2) - i\gamma E_{q_3}(q_1, q_2)] \end{aligned} \quad (5.20)$$

L'intégration élimine les termes en \mathbf{e}_z et introduit une règle de sélection des modes qui se traduit par le terme $\delta_{M,1}$. Les moments dipolaires électrique et magnétique correspondent aux modes $M = 1$. Le vecteur $(\mathbf{e}_x + i \mathbf{e}_y)$ indique que les moments sont tournant dans le plan du tore (x, y) et ne possèdent aucune composante suivant l'axe z . Un comportement similaire se retrouve dans l'analyse des moments dipolaires électrique et magnétique d'un

cylindre métallique avec un coeur diélectrique [16].

Le calcul analytique de l'intégrale sur q_2 est possible dans le contexte de l'approximation des tores fins. La dépendance en q_1 des équations (5.19) et (5.20) est regroupée dans des fonctions $f^{l/2}(q_1, q_2) = (\cosh q_1 - \cos q_2)^{l/2}$ avec $l = 3, 5, 7$. Les fonctions $f^{l/2}(q_1, q_2)$ peuvent être exprimées par un développement de Taylor si la fonction $\cosh q_1$ ne prend que des valeurs très supérieures à 1.

$$f^{-l/2}(q_1, q_2) = \cosh^{-l/2} q_1 \left[1 + \sum_{n=1}^{+\infty} \frac{(-1)^n}{n!} \left(\frac{\cos q_2}{\cosh q_1} \right)^n \prod_{k=1}^n (l - k + 1) \right] \quad (5.21)$$

Cette condition est toujours remplie pour un tore dont l'épaisseur d est plus petite que le rayon intérieur R_{in} , puisque, pour ces tores, nous pouvons toujours écrire $q_1 \geq q_1^0 \gg 1$ dans les relations (5.19) et (5.20). Le calcul analytique de l'intégrale sur q_2 peut donc s'entreprendre que dans le cadre de l'approximation des tores fins. Nous posons donc $\Pi = 1$ dans les expressions des champs électriques (éq. (3.58), (3.62), (3.64)). Par cette approximation, la dépendance en q_2 dans les équations 5.19 et 5.20 se limite alors à une somme de termes correspondant à des produits de $\cos(nq_2)$ avec les fonctions $U_N(q_2)$ et $U_{N+1}(q_2)$. L'intégration analytique sur des puissances de cosinus n'est pas possible. Pour contourner ce problème, il faut utiliser les développements en série suivants [108] :

$$\cos^n q_2 = \frac{1}{2^n} \left[\sum_{j=0}^{n/2-1} 2 \binom{n}{j} \cos(n-2j)q_2 + \binom{n}{2} \right] \quad (5.22)$$

si n prend une valeur paire, ou

$$\cos^n q_2 = \frac{1}{2^{n-1}} \left[\sum_{j=0}^{(n-1)/2} \binom{n}{j} \cos(n-2j)q_2 \right] \quad (5.23)$$

Si la valeur de n est impaire. Le coefficient binomial $\binom{n}{j}$ est défini par :

$$\binom{n}{j} = \frac{n!}{(n-j)! j!} \quad (5.24)$$

L'intégration analytique sur q_2 aboutit aux expressions suivantes en fonction de la parité du mode :

$$\mathbf{P}_{M,N;\Pi=1} = \begin{cases} -\pi (\mathbf{e}_1 + i\mathbf{e}_2) \delta_{M,1} \int_{q_1^0}^{+\infty} S_1(q_1) dq_1 & \text{(pair)} \\ 0 & \text{(impair)} \end{cases} \quad (5.25)$$

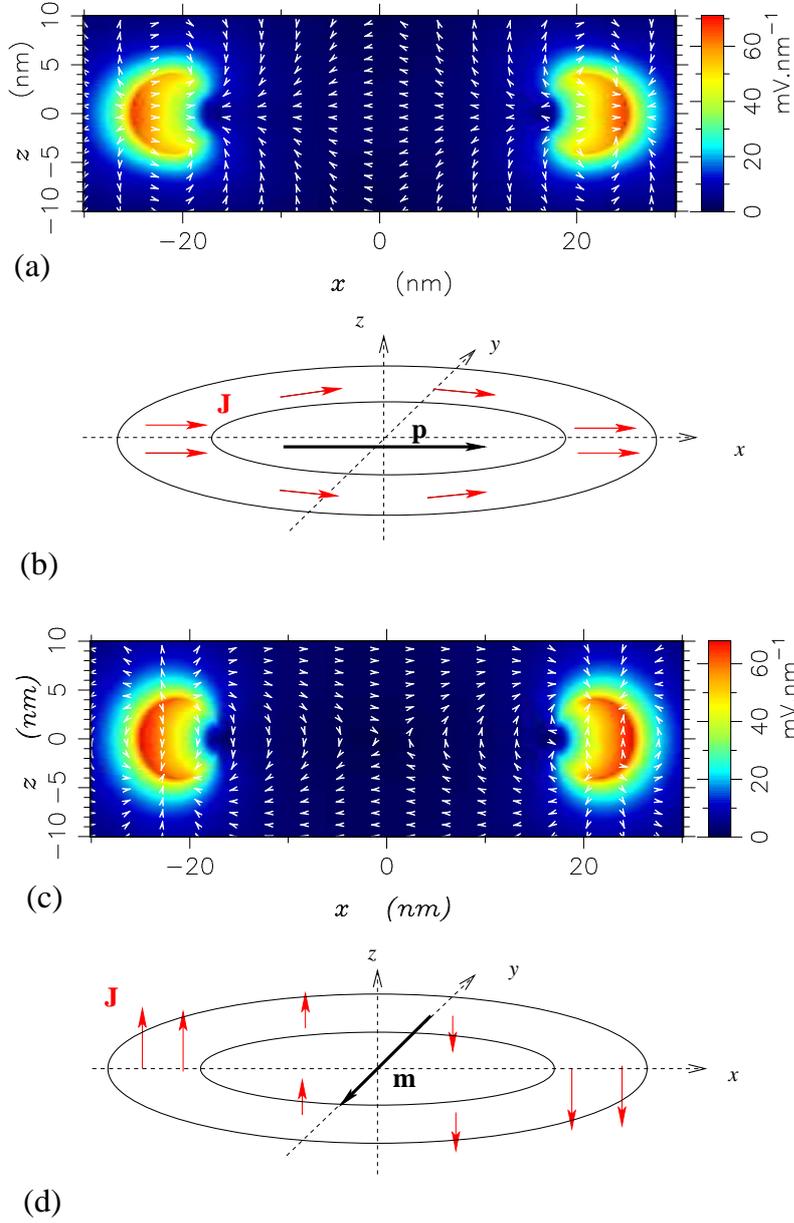


FIG. 5.8 – (a) Distribution du champ électrique du mode pair $M = 1, N = 1$ ($\omega_{M=1, N=1; \Pi=1}^-$) dans le plan xz : l'intégration sur l'objet d'une telle distribution donne des moments dipolaires électrique non nuls (b). Distribution du champ électrique du mode impair $M = 1, N = 1$ pour la même fréquence dans le plan xz (c) : les composantes de $\mathbf{r} \times \mathbf{J}$ selon l'axe z s'ajoutent lors de l'intégration pour \mathbf{m} . Il en résulte un moment dipolaire électrique nul et un moment dipolaire magnétique non nul (d).

$$\mathbf{m}_{M,N;\Pi=1} = \begin{cases} 0 & \text{(pair)} \\ -\frac{i a \pi \omega}{2c} (i \mathbf{e}_1 - \mathbf{e}_2) \delta_{M,1} \int_{q_1^0}^{+\infty} S_2(q_1) dq_1 & \text{(impair)} \end{cases} \quad (5.26)$$

$S_1(q_1)$ et $S_2(q_1)$ sont des fonctions de q_1 qui doivent être intégrées numériquement.

Ce calcul montre qu'un mode propre pair $M = 1$ d'un tore fin peut soutenir un moment dipolaire électrique non nul et un moment magnétique nul. Si le mode propre est impair, le moment électrique est nul tandis que le moment magnétique ne l'est pas. Comme expliqué précédemment, les modes en $N = 0$ n'existe que pour des solutions dont la dépendance en q_2 est paire. Le mode propre du tore d'ordre le plus bas capable de soutenir un dipôle magnétique est donc nécessairement le mode impair d'ordre 1 $M = 1$ $N = 1$. Sur les figures 5.8 sont représentées les distributions de champ pour le mode pair $M = 1, N = 1$ ($\omega_{M=1,N=1;\Pi=1}^-$) (Fig. a et b) et impair $M = 1, N = 1$ ($\omega_{M=1,N=1;\Pi=1}^-$) (Fig. c et d). Les directions du champ électrique à l'intérieur du tore indique, pour le mode pair, un dipôle électrique, et pour le mode impair, un dipôle magnétique. Nous avons choisi de ne représenter que les distributions de champ relatives à la fréquence $\omega_{M=1,N=1;\Pi=1}^-$ des modes. En effet, pour la branche des fréquences inférieures, le facteur $U_{N=1}(q_2)$ détermine principalement la distributions des charges des modes pairs ou impairs. Pour la branche des fréquences supérieures, le facteur en $U_{N+1=2}(q_2)$ impose la répartition des charges. Cette dernière distribution peut engendrer un dipôle magnétique, mais les directions du champ électrique dans le tore sont plus complexes entraînant un moment dipolaire magnétique ou électrique d'amplitude plus faible.

Calculs des moments dipolaires si $M = 0$:

Intéressons nous maintenant au cas des modes $M = 0$. L'intégration sur q_3 dans l'expression du moment dipolaire électrique donne :

$$\mathbf{p}_{N,M=0} = -\pi \int_{q_1^0}^{+\infty} dq_1 \int_0^{2\pi} dq_2 h(q_1, q_2) [\beta E_{q_1}(q_1, q_2) + \kappa E_{q_2}(q_1, q_2)] \mathbf{e}_z \quad (5.27)$$

Si $E_{q_1}(q_1, q_2)$ et $E_{q_2}(q_1, q_2)$ correspondent aux composantes d'un mode pair, les fonctions $U_n(q_2)$ sont des cosinus et les intégrales sur q_1 et q_2 s'annulent . Si le mode $M = 0$ considéré est impair, $|\mathbf{p}_{N,M=0}|$ est non nulle. Les modes $M = 0$ impairs génèrent un moment dipolaire électrique dirigé suivant le vecteur \mathbf{e}_z .

Le moment dipolaire magnétique s'exprime après intégration sur q_3 :

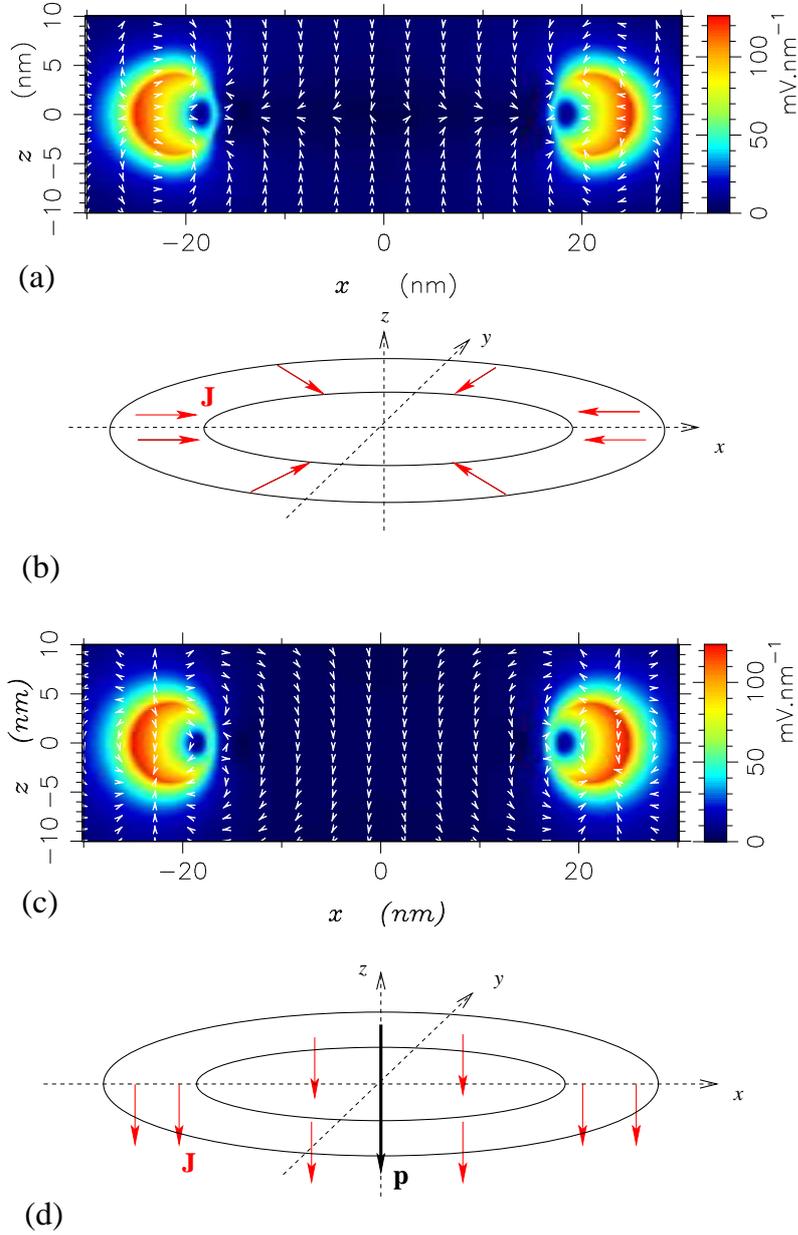


FIG. 5.9 – (a) Distribution du champ électrique du mode pair $M = 0, N = 0$ ($\omega_{M=0, N=0; \Pi=1}^+ / c$) dans le plan xz : l'intégration sur l'objet d'une telle distribution donne des moments dipolaires électrique et magnétique nuls (b). Distribution du champ électrique du mode impair $M = 0, N = 1$ ($\omega_{M=0, N=1; \Pi=1}^- / c$) dans le plan xz (c) : les composantes du champ selon l'axe z se s'annulent pas lors de l'intégration, il en résulte un moment dipolaire électrique non nul (d).

$$\mathbf{m}_{N,M=0} = -\frac{ia\pi}{2} \frac{\omega}{c} \delta_{M,1} \int_{q_1^0}^{+\infty} dq_1 \int_0^{2\pi} dq_2 h(q_1, q_2) \varrho E_{q_3}(q_1, q_2) \mathbf{e}_z = 0 \quad (5.28)$$

En effet, la dépendance selon q_2 du terme $E_{q_3}(q_1, q_2)$ est restituée par les seules fonctions $U_N(q_2)$ et $U_{N+1}(q_2)$ qui sont des fonctions cosinus ou sinus suivant la parité du mode. Leur intégration de 0 à 2π donne donc un résultat nul. Les modes $M = 0$ ne peuvent donc supporter un moment dipolaire magnétique.

Pour illustrer ce résultat, nous avons représenté sur la figure 5.9 (a), la distribution du champ électrique du mode pair $M = 0$, $N = 1$ ($\omega_{0,1}^-/c$) dans le plan xz . Lors de l'intégration sur le tore, chaque composante du champ se compense pour donner des moments dipolaires électrique et magnétique nuls. Pour le mode impair $M = 0$, $N = 1$ ($\omega_{0,1}^-/c$) (Fig. 5.9 (b)), les composantes du champ selon z s'ajoutent lors de l'intégration sur l'objet. Il en résulte un moment dipolaire électrique. La distribution de charge relative au mode $\omega_{0,1}^+/c$ appartenant à la branche supérieure de fréquences entraîne également l'apparition d'un moment dipolaire électrique. Toutefois, la repartition des charges selon la coordonnée q_2 dépend principalement du terme $\sin 2q_2$. Le moment dipolaire qui en résulte est plus faible que celui du mode appartenant à la branche inférieure de fréquences. Ce mode va donc interagir plus fortement avec un champ appliqué axial parallèle à \mathbf{e}_z .

Conclusions

D'après le développement multipolaire réalisé au chapitre 1 pour une particule de forme quelconque, le couplage des modes propres d'un tore de taille sub-longueur d'onde avec un champ externe est décrit en première approximation par les termes dipolaires $\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}_0 + \mathbf{m} \cdot \mathbf{B}_0$. Les modes propres associés aux dipôles \mathbf{p} et \mathbf{m} contribuent le plus significativement aux propriétés optiques. Dans le chapitre précédent, nous avons montré que les relations de dispersion des modes propres d'ordre 1 ($M = 1$ $N = 0$ et $M = 0$ $N = 1$) interviennent dans les expressions des sections efficaces. Cela se justifie par le fait que ces modes peuvent soutenir des dipôles électriques. De plus, le recouvrement entre le champ appliqué et la structure des champs de ces modes est optimal, rendant ainsi leur excitation aisée.

Le résultat marquant des calculs précédents est la capacité du mode propre impair $M = 1$ $N = 1$ à soutenir un moment dipolaire magnétique non nul et un moment dipolaire électrique nul aux fréquences optiques. Comme mentionné précédemment, les modes propres pairs et impairs sont dégénérés. Afin de privilégier l'interaction avec le dipôle magnétique, il sera nécessaire de chercher les conditions d'excitation du mode impair ou

de trouver une condition permettant la levée de dégénérescence.

Chapitre 6

Spectres d'extinction des nanotores

Les chapitres précédents ont étudié analytiquement les propriétés optiques des tores métalliques de taille sub-longueur d'onde. Nous avons dégagé d'une part que seuls deux modes propres du tore peuvent être facilement excités par une onde plane incidente. D'autre part, il est apparu que l'un des modes du tore métallique possède un dipôle magnétique aux fréquences optiques, alors que son moment dipolaire électrique est nul.

Avant de rechercher les conditions d'excitation de ce mode caractérisé par un moment dipolaire magnétique, nous allons vérifier la validité de nos calculs analytiques. Premièrement, nous allons comparer les spectres d'extinction issus des relations analytiques trouvées au chapitre 3, avec des spectres obtenus par une méthode de calcul numérique, et ce pour les deux polarisations possibles du champ incident (planaire et axial).

Ensuite, l'obtention récente de résultats expérimentaux sur un nombre significatif d'échantillons nous permettra de procéder à une confrontation des résultats théoriques et expérimentaux. La validation expérimentale des propriétés optiques impliquant les caractéristiques dipolaires électriques prédites par notre analyse donnera de la crédibilité à l'autre prédiction majeure de notre étude concernant les caractéristiques dipolaires magnétiques.

6.1 Spectres d'extinction analytiques et numériques

Afin de comparer les propriétés résonantes des nanotores métalliques prédites par notre analyse avec les résultats d'une autre méthode, nous avons choisi de déterminer numériquement leur spectres d'extinction par la méthode du tenseur de Green (annexe C). Le programme calcule la section efficace d'extinction d'une onde plane linéairement polarisée et incidente sur le nanotore. Cette méthode numérique met en oeuvre une procédure de discrétisation de l'espace direct. Elle est bien adaptée à l'étude des phénomènes de diffu-

sion par des objets nanoscopiques où à l'étude de phénomènes d'optique de champ proche. Elle inclut les ondes propagatives et évanescentes et respecte leur caractère vectoriel des champs. Surtout, cette méthode prend en compte les effets de retard, ce qui n'est pas le cas dans notre étude analytique conduite dans les chapitres précédents. De plus, cette méthode est indépendante de la forme et de la taille des objets à étudier. Enfin, elle permet d'évaluer la structure du champ électrique à l'intérieur et à l'extérieur de la particule.

Cependant, cette méthode numérique ne possède pas que des avantages, même si elle semble parfaitement adaptée à notre problème. En effet, même si la particule étudiée peut être de forme complexe, l'obtention de résultats convergents nécessitent l'utilisation d'un nombre important de cellules de discrétisation en particulier si le centre diffuseur présente des formes courbées. Sans cela, la géométrie de la particule discrétisée peut être très différente de celle de la particule à modéliser. Dans le cas des tores, les nombreuses symétries et les formes très arrondies nécessitent donc une discrétisation très fine de l'objet. Les résultats numériques que nous allons présentés ont donc nécessité un ordinateur possédant une taille de mémoire importante. Par exemple, les résultats obtenus sur le tore de dimension $d = 20$ nm et $R_{in} = 35$ nm, ont nécessité une discrétisation de l'objet avec des cellules cubiques de taille 2.5 nm \times 2.5 nm \times 2.5 nm. Le tore est ainsi représenté par 5808 cellules, ce qui correspond à une occupation par le programme de calcul d'environ 4.4 Giga-octets d'espace mémoire.

6.1.1 Champ axial

Dans un premier temps, intéressons nous à la configuration relative à un champ incident polarisé verticalement au plan du nanotore d'or.

$$\mathbf{E}_{inc} = \mathbf{E}_0 e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad \text{avec } \mathbf{E}_0 = (0,0,E_z) \text{ et } \mathbf{k} \cdot \mathbf{E}_0 = 0 \quad (6.1)$$

Dans l'approximation non retardée, le champ appliqué sur le tore est donc axial et uniforme ($\mathbf{E}_{inc} = E_0 \mathbf{e}_z$) si la taille de la particule est petite devant la longueur d'onde. Nous avons reporté sur la figure 6.1(a), les valeurs de la section efficace d'extinction obtenues en fonction de la longueur du champ incident, par l'évaluation de son expression analytique (4.35) :

$$C_{ext} = C_{sca} + 4\pi k v \Im \left(\frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \eta_z W_1}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \right) \quad (6.2)$$

Trois tailles de tores ont été considérées : le tore t_a possède une épaisseur de 21 nm et un rayon intérieur de 21 nm ($d/R_{in} = 1$). L'épaisseur de tore t_b est $d = 15$ nm et son rayon intérieur est $R_{in} = 27$ nm ($d/R_{in} = 0.55$). Le tore t_c est tel que : $d = 12$ nm et $R_{in} = 30$ nm ($d/R_{in} = 0.4$). Les sections efficaces d'extinction calculées par la méthode numérique sont exposées sur la figure 6.1(b) pour ces trois même tores. Dans les deux calculs, les données expérimentales ont été utilisées pour décrire la fonction diélectrique de l'or. Une résonance apparaît clairement sur les différents spectres. Sur les courbes correspondantes à l'expression analytique, nous trouvons que le maximum du pic de résonance se situe, pour les trois tores, à une longueur d'onde de 496 nm. A partir du modèle numérique, nous trouvons la résonance à $\lambda = 498$ nm. Cette résonance reste aussi inchangée suivant les dimensions des tores. Dans le cas du champ axial, nous pouvons vérifier qu'il existe un bon accord entre résultats analytiques et numériques, validant ainsi le développement analytique et, pour le régime $2(d + R_{in})/\lambda$ considéré, les approximations employées au chapitre 4.

Compte tenu de l'expression (4.35), nous savons que cette résonance est due à l'excitation du mode d'ordre 1 $M = 0$, $N = 1$. Dans le chapitre précédent, nous avons trouvé que si le facteur de forme était petit, les fréquences de ce mode étaient proches de celle d'une surface d'or ω_s/c . La fréquence plasmon pour une interface plane or-air, avec prise en compte de la partie imaginaire de la fonction diélectrique de l'or, est $\omega_s/c = 12.77 \mu\text{m}^{-1}$ soit $\lambda_s = 492$ nm. En calculant au chapitre précédent les fréquences de modes propres, nous avons trouvé deux fréquences possibles pour ce mode. Toutefois, sur les spectres d'extinction, nous ne voyons apparaître que la résonance dûe à la branche inférieure de fréquences. Ce fait est lié à la prise en compte de la partie imaginaire de la fonction diélectrique de l'or dans les calculs d'extinction qui provoque un décalage vers le rouge des fréquences ainsi qu'un élargissement spectral de la résonance qui masque le pic de résonance lié à la branche supérieure de fréquences propres [109].

La méthode de Green permettant d'évaluer les champs électriques à l'intérieur et à l'extérieur de la particule, nous avons effectué le calcul d'une carte d'intensité du champ électrique à la fréquence de résonance, dans le plan xz du tore. Sur la figure 6.2, nous avons représenté cette distribution de champ obtenue numériquement (Fig. 6.2 a) avec celle obtenue à partir des formes analytiques du champ électrique (Fig. 6.2 b) (eq. 4.61, 4.64, 4.65). Même si la méthode Green montre ici ses limites en faisant apparaître la discrétisation de

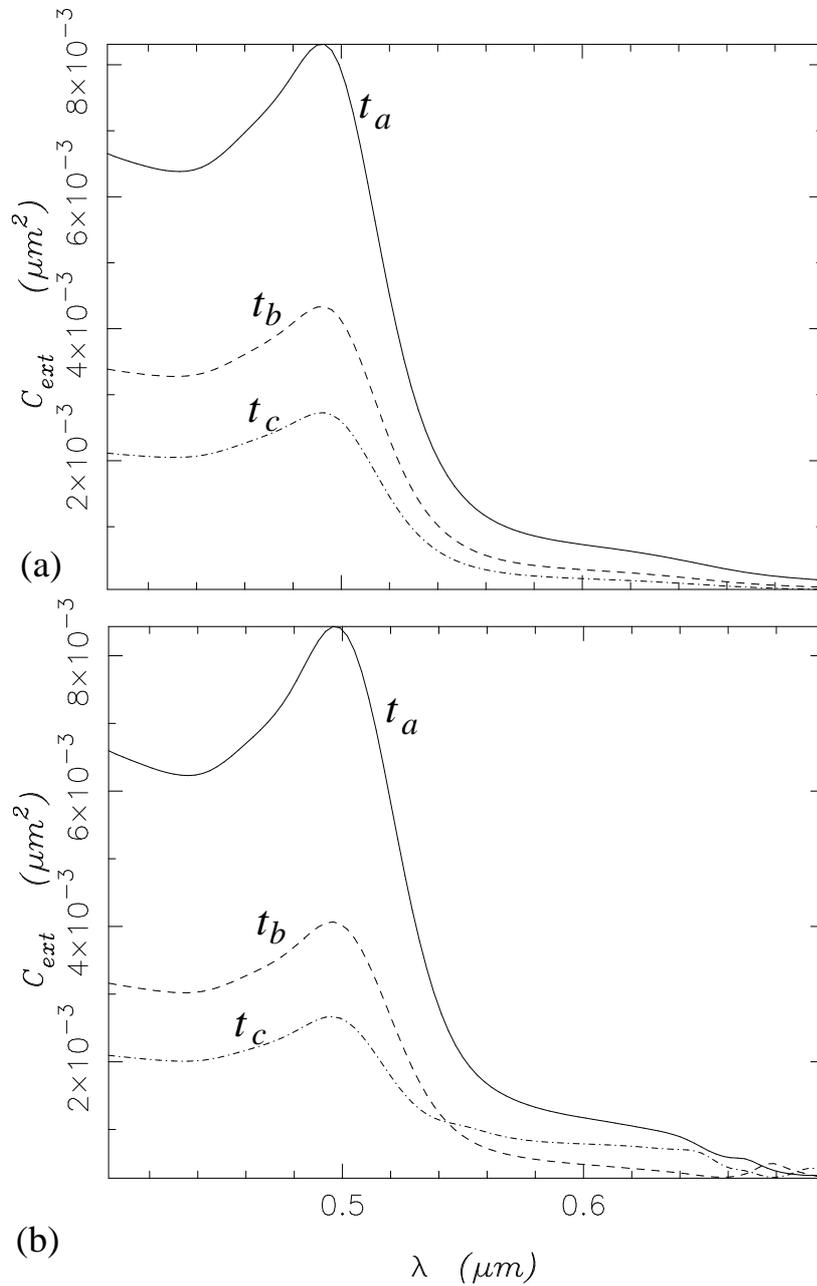


FIG. 6.1 – Sections efficaces d’extinctions calculées par la formule analytique (a) et par méthode de Green numérique (b) pour différents tores. La polarisation de l’onde plane incidente est axiale. Le tore t_a possède une épaisseur de 21 nm et un rayon intérieur de 21 nm ($d/R_{in} = 1$). Le tore t_b est tel que : $d = 15$ nm et $R_{in} = 27$ nm ($d/R_{in} = 0.55$). Le tore t_c est tel que : $d = 12$ nm et $R_{in} = 30$ nm ($d/R_{in} = 0.4$). Le milieu extérieur est l’air.

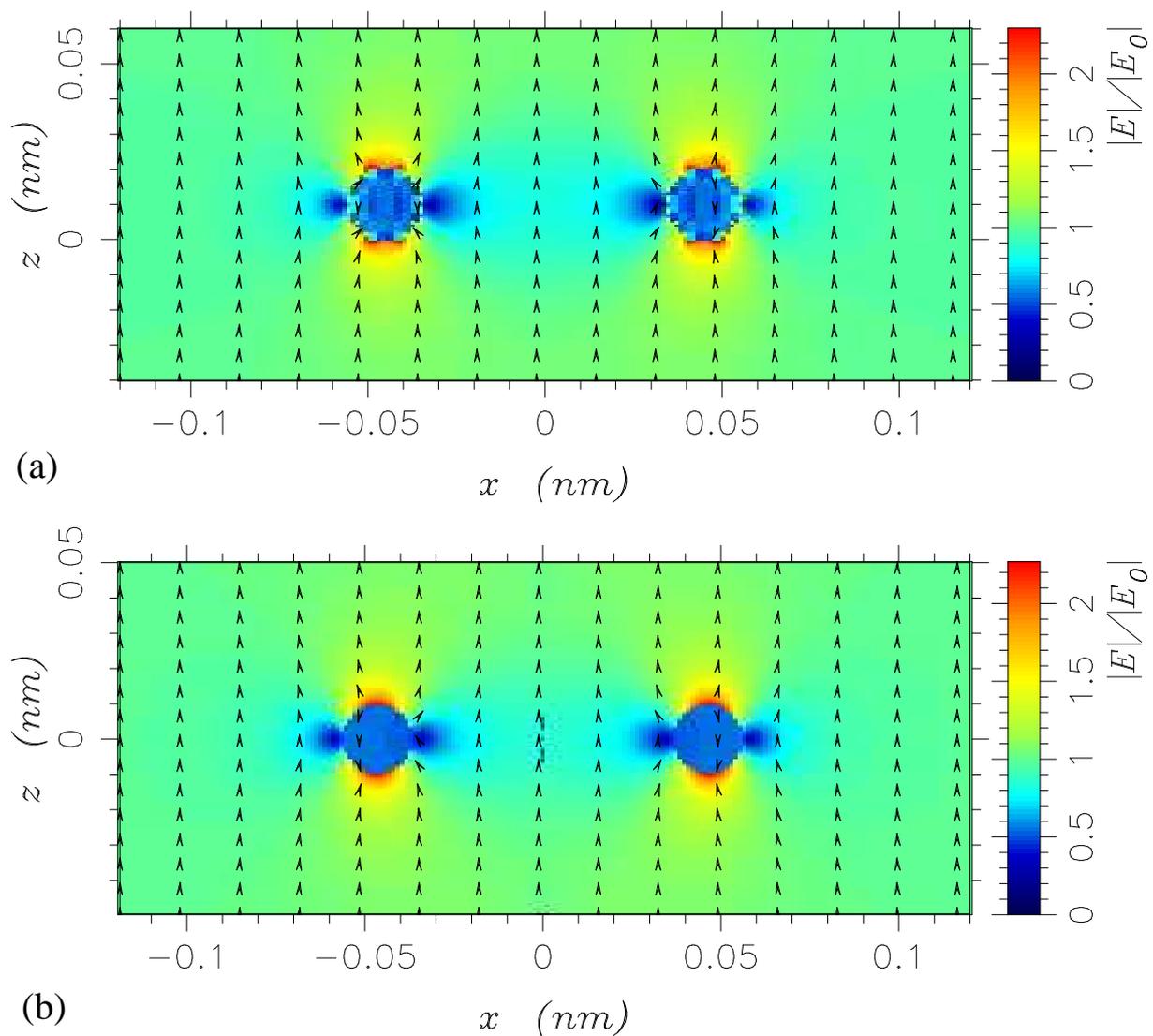


FIG. 6.2 – Distributions du champ électrique numérique (Méthode de Green) (a) et théorique (b), pour un tore de dimensions $d = 20$ nm et $R_{in} = 35$ nm, plongé dans l'air. Le champ appliqué est axial.

l'objet, les deux distributions de champs concordent de manière satisfaisante.

6.1.2 Champ planaire

L'autre configuration d'excitation possible du tore que nous avons précédemment étudiée, correspond à un champ exciteur planaire :

$$\mathbf{E}_{inc} = \mathbf{E}_0 e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad \text{avec } \mathbf{E}_0 = (E_x, 0, 0) \text{ et } \mathbf{k} \cdot \mathbf{E}_0 = 0 \quad (6.3)$$

Dans l'approximation non retardée ($\mathbf{E}_{inc} = E_0 \mathbf{e}_x$), les valeurs des la sections efficaces d'extinction des tores t_a , t_b et t_x sont obtenues par l'expression analytique (4.58) :

$$C_{ext} = C_{sca} + 4\pi k v \Im \left(\frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \eta_x W_0}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \right) \quad (6.4)$$

et sont reportées sur la figure 6.3 (a). La figure 6.3 (b) résume les sections efficaces évaluées à l'aide de notre méthode numérique. Nous voyons que l'accord entre le modèle analytique et la méthode numérique reste bon, même si les fréquences de résonances obtenues numériquement sont légèrement décalées vers le rouge. Par l'étude préalable de l'interaction d'un tore avec un champ uniforme réalisée au chapitre 4, nous savons qu'un champ appliqué planaire excite le mode $M = 1$ $N = 0$ du tore. Nous avons vu que la fréquence appartenant à la branche inférieure des modes était caractérisée par une forte dispersion. Nous avons observé que la position du pic de résonance est très sensible au facteur de forme. Une faible variation de ce facteur entre deux tores se traduit par un glissement important de la fréquence de résonance.

Nous savons également que le mode $M = 1$ $N = 0$ possède deux fréquences. L'interaction du mode appartenant à la branche inférieure de fréquences avec le champ incident est clairement visible sur les différents spectres. Toutefois, le pic de résonance correspondant à la branche supérieure n'apparaît pas. Ce phénomène s'explique par le fait que cette résonance plasmon se superpose au seuil des transitions interbandes de l'or. L'augmentation de la contribution interbande conduit à un fort étalement spectral de la résonance aux faibles longueurs d'onde ($\omega_{M=1, N=0}^+$). Cette résonance n'apparaît pas clairement comparée à la résonance aux grandes longueurs d'onde ($\omega_{M=1, N=0}^-$), qui apparaît dans une zone du spectre où l'absorption interbande est faible. Remarquons qu'une faible résonance apparaît pour le tore t_a vers 580 nm. Cette résonance est en fait un artefact lié aux données expérimentales de l'or qui possèdent une inflexion vers cette fréquence (Fig. 5.1).

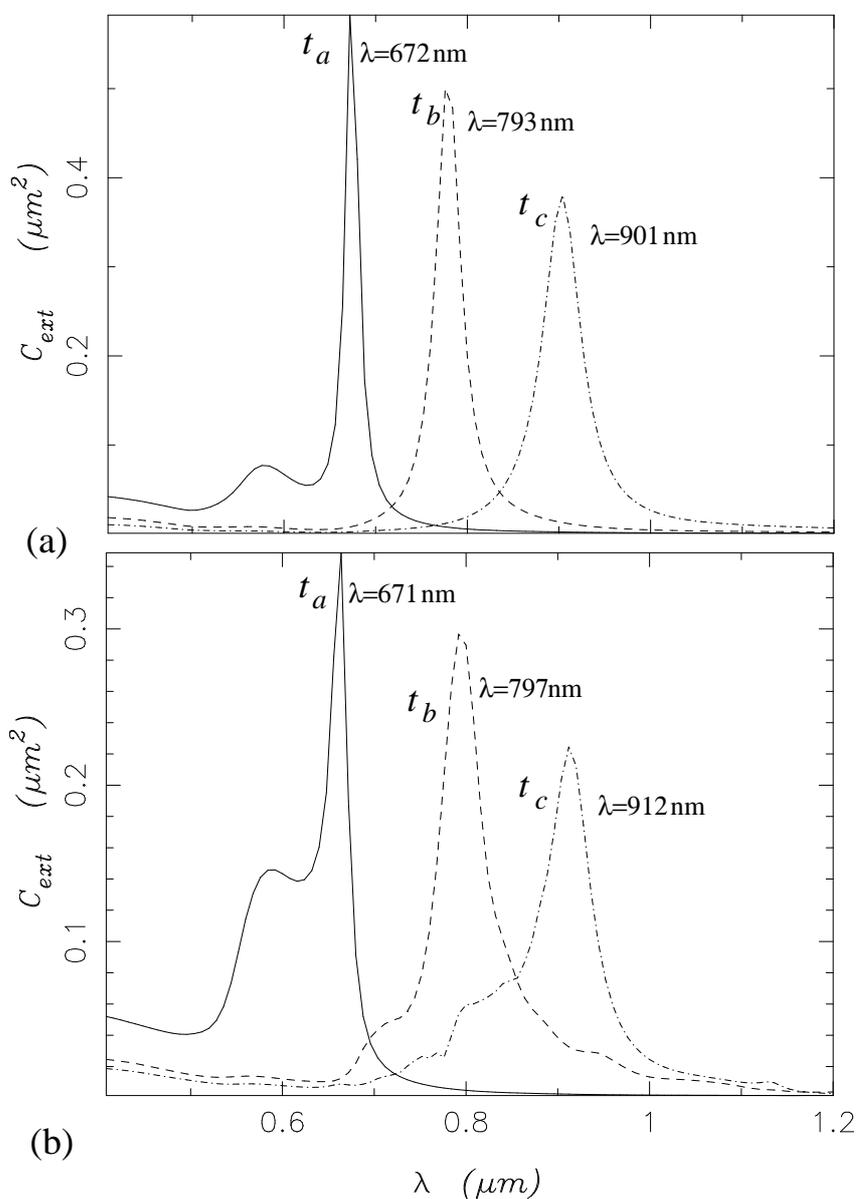


FIG. 6.3 – Sections efficaces d'extinctions calculées par la formule analytique (a) et par méthode de Green (b) pour différents tores. La polarisation de l'onde plane incidente est planaire. Le tore t_a possède une épaisseur de 21 nm et un rayon intérieur de 21 nm ($d/R_{in} = 1$). Le tore t_b est tel que : $d = 15$ nm et $R_{in} = 27$ nm ($d/R_{in} = 0.55$). Le tore t_c est tel que : $d = 12$ nm et $R_{in} = 30$ nm ($d/R_{in} = 0.4$). Le milieu extérieur est l'air

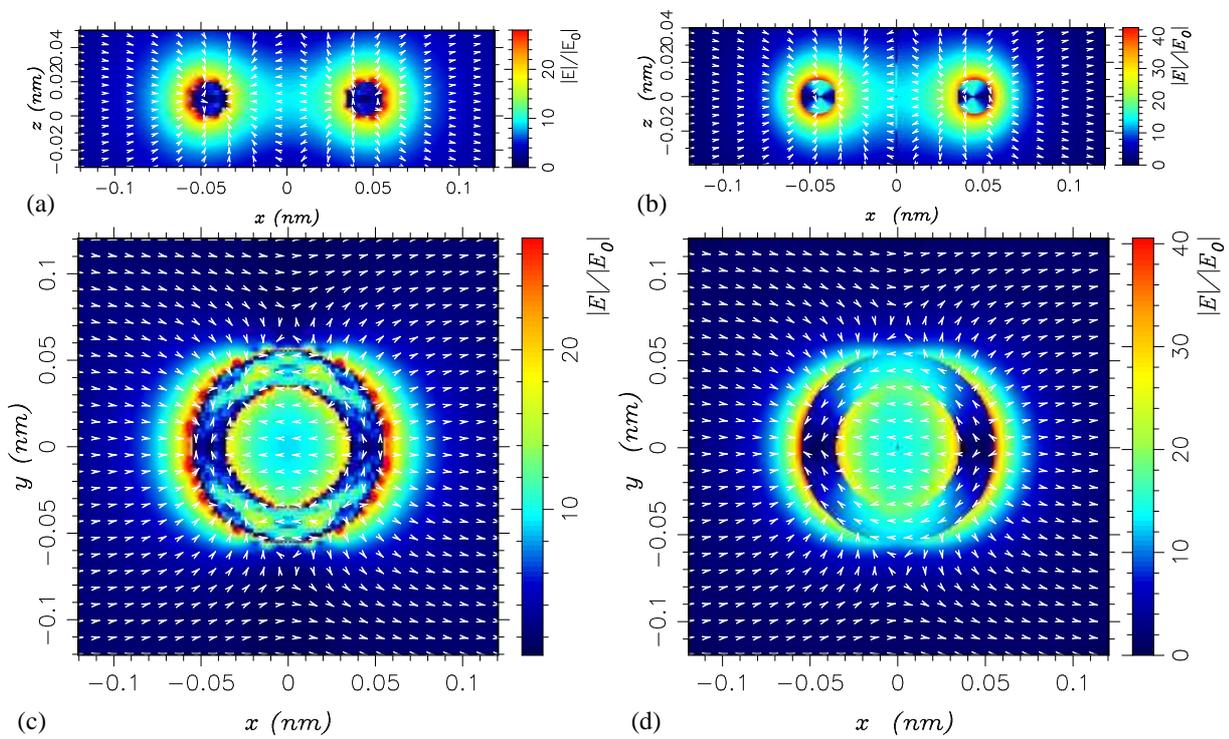


FIG. 6.4 – Distributions du champ électrique numérique ($\lambda = 800$ nm) (a et c) et analytique ($\lambda = 772$ nm) (b et d), à pour un tore de dimensions $d = 20$ nm et $R_{in} = 35$ nm, plongé dans l'air. Le champ appliqué est planaire.

La figure 6.4 présente la distribution spatiale du champ électrique calculée à la résonance pour un tore de dimensions $d = 20$ nm et $R_{in} = 35$ nm plongé dans l'air. Encore une fois, la méthode numérique (Fig. 6.4 (a) et (c)) peine pour rendre compte des directions ainsi que de l'intensité du champ électrique à l'intérieur de la structure. Toutefois, cette restitution est suffisante pour valider les résultats obtenus analytiquement (Fig. 6.4 (b) et (d)) à partir des relations (4.61) (4.64) et (4.65) à l'extérieur du tore.

La distribution spatiale du champ électrique dans le plan du tore montre qu'un champ d'intensité et de direction uniforme est présent dans la cavité de la particule. L'intensité maximale du champ se trouve dans le plan xy du tore, au niveau de l'interface métal-air avec un facteur d'amplification élevé $|E|/|E_0| \simeq 40$. Ces effets, dûs à la distribution des charges à la résonance, combinés avec la sensibilité de la résonance au facteur de forme indique que les particules de forme torique possèdent un haut potentiel dans les applications d'optiques non-linéaires [8], ainsi que dans le cadre d'études SERS (Surface Enhancement Raman Scattering) [110, 111, 112].

6.1.3 Sensibilité des fréquences de résonance au milieu extérieur

L'excitation d'un plasmon de surface pour un film mince métallique dépend de l'indice de réfraction des milieux environnants. Cette propriété est utilisée pour la réalisation de biocapteurs optiques [113]. Basée sur la configuration Kretschmann-Raether [114], cette méthode de détection d'adsorption de molécules biologiques est très sensible. Une lumière monochromatique est envoyée sur le film métallique au travers du prisme et un détecteur mesure la réflexion. L'adsorption des molécules sur la surface libre du métal change l'indice de réfraction sur la face libre du film mince, ce qui provoque un changement dans la condition d'excitation du plasmon de surface. Une modification de la réflexion est alors observée.

Le film mince métallique peut être remplacé par une nanoparticule [115, 116]. L'adsorption des molécules sur le métal modifie l'indice de réfraction environnant, provoquant un red-shift de la longueur d'onde de résonance de la nanoparticule métallique. La diffusion et l'extinction sont alors modifiés et observés au travers d'un simple microscope optique. Malheureusement, la sensibilité de ce dispositif est plus faible que dans le cas du film mince. Toutefois, le faible volume de détection, typiquement de quelques nanomètres autour de la particule, confère à ce dispositif, un avantage important. Le volume de l'expérience étant plus petit que dans le cas du film mince, la détection se fait sur un très faible nombre de molécules [117]. Dans le cas de biomolécules présentant un nombre important

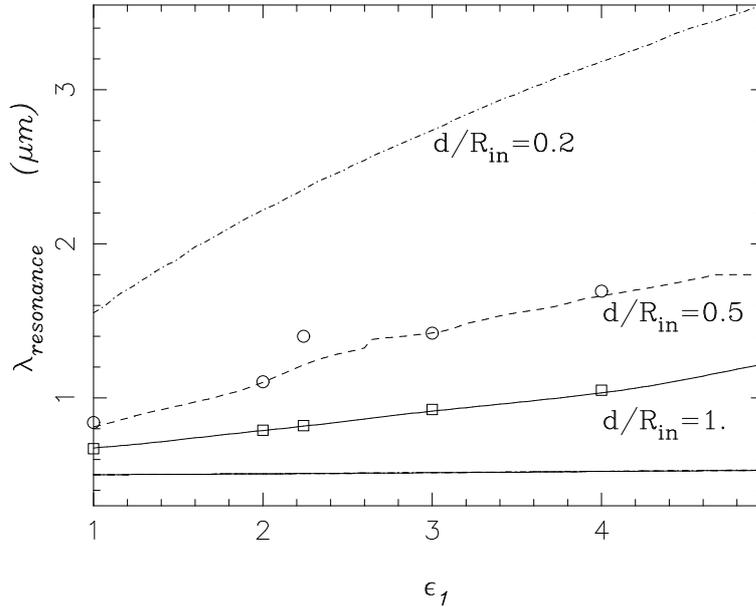


FIG. 6.5 – Sur base des formules analytiques de l’approximation non retardée : sensibilité des résonances du tore en fonction de la constante diélectrique du milieu extérieur, et en fonction du facteur de forme d/R_{in} . Les carrés (resp. cercles) représentent les longueurs d’onde de résonance obtenues par méthode Green pour un tore $d/R_{in} = 1$ (resp. $d/R_{in} = 0.5$).

d’atomes, la détection peut se faire sur une molécule unique, si la géométrie de la particule le permet. En effet, plus la forme de la nanoparticule est complexe, plus ses résonances seront sensibles à un faible changement de constante diélectrique du milieu extérieur. Par exemple, le décalage de 1 nm en longueur d’onde de la résonance d’une nanoparticule d’argent de forme triangulaire correspond à un changement de $1/200=0.005$ de l’indice de réfraction [118], tandis que ce changement est de $1/100=0.01$ pour une nanosphère d’argent de dimension comparable.

Nous avons étudié la dépendance des résonances du tores en fonction de la constante diélectrique du milieu extérieur. La figure 6.5 montre le décalage en longueur d’onde des deux résonances précédentes. Le pic de résonance lié à l’excitation du mode $M = 0 N = 1$ est très peu sensible au milieu extérieur ($\lambda_{res} = 496$ nm pour $\epsilon_1 = 1$ et $\lambda_{res} = 531$ nm pour $\epsilon_1 = 5$), tandis que la fréquence de résonance du mode $M = 1 N = 0$ change fortement en fonction de ϵ_1 . Cette dépendance au milieu extérieur est d’autant plus importante que le tore est fin. Pour un tore de rapport $d/R_{in} = 1$, un décalage de 1 nm sur le maximum du pic d’extinction correspond à un changement de $1/444$ de l’indice de réfraction $\sqrt{\epsilon_1}$ du milieu extérieur. Pour un tore $d/R_{in} = 0.5$, le changement de l’indice est de $1/806$, et pour

un tore $d/R_{in} = 0.2$, l'indice change de $1/1666$. Pour comparaison, la variation d'indice pour 1 nm de décalage du pic de résonance pour un sphère d'or creuse de 50 nm de diamètre et de 4.5 nm d'épaisseur est de $1/400$ [79]. Les particules de forme torique possèdent donc un mode plasmon extrêmement sensible comparées aux autres particules. De plus, la structure de ce mode, et notamment la direction et l'intensité relativement uniformes du champ électrique dans la cavité du tore (Fig. 6.4), rend cette particule intéressante pour la détection de longues molécules biologiques.

6.2 Données expérimentales

Dans les sections précédentes, les simulations nous ont permis de vérifier les approximations effectuées dans nos travaux analytiques. Nous avons ensuite cherché à confronter nos résultats théoriques à des résultats expérimentaux. Le très faible nombre d'études sur des anneaux métalliques ne permet pas une comparaison aisée entre théorie et expérience rapportées dans la littérature. Pour remédier à ce manque d'informations exhaustives, des particules de forme toriques ont été réalisées et caractérisées optiquement (spectre d'extinction) à l'Université de Graz (Autriche) dans le groupe du Prof. J. R. Krenn par Daniel Koller et Andreas Hohenau. Dans un premier temps, nous rappellerons brièvement la technique de fabrication utilisées pour l'obtention des échantillons, ainsi que la méthode générale de mesure d'extinction. Cela nous permettra de mettre en évidence certaines limites inhérentes aux méthodes expérimentales.

6.2.1 Fabrication et mesures d'extinction

Les échantillons ont été obtenus à l'aide de la dernière génération d'équipements de lithographie électronique mise sur le marché par la société RAITH. Cette technique consiste à déposer sur un substrat de verre dopé ITO, une couche de polyméthyle méthacrylate (PMMA), résine vinylique sensible aux électrons [119]. Après une étape de recuit afin d'évaporer le solvant de la solution de PMMA, l'échantillon est placé dans l'enceinte d'un microscope électronique à balayage. Le faisceau d'électrons, piloté par un logiciel de conception graphique, modifie la structure chimique de la couche de résine. Il en suit une étape de développement permettant de dissoudre les régions de résine insolée. Une couche d'or est alors évaporée thermiquement et une dernière étape de révélation ("Lift Off") permet de retirer de l'échantillon les zones de PMMA restantes. Les particules d'or apparaissent donc à la surface du verre. Par cette méthode, il n'est pas possible de contrô-

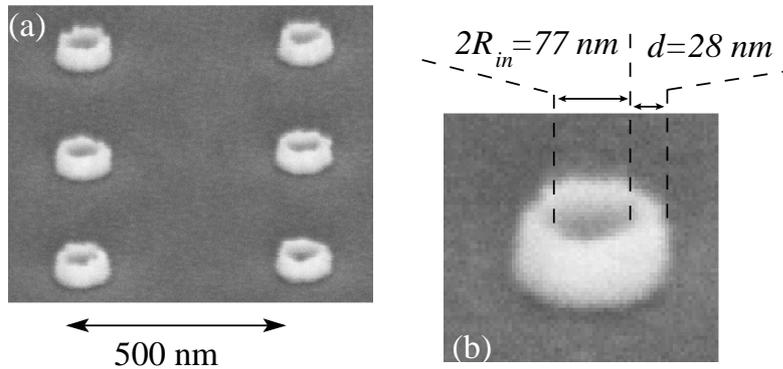


FIG. 6.6 – Images au microscope électronique à balayage de tores fabriqués et caractérisés à l’Université de Graz (Autriche). (a) L’espacement entre chaque particule est de 500 nm. (b) Zoom sur un tore : l’épaisseur moyenne d est évalué à 28 nm et le rayon intérieur est de 33.5 nm environ.

ler la forme de la particule en hauteur. L’obtention de particules de forme parfaitement torique est donc impossible.

Les propriétés optiques d’un ensemble de nanoparticules reflètent celles, individuelles, des nanoparticules pourvu que la distance interparticules soit plus grande que leur taille. En effet, lorsque la densité est trop forte, le couplage dipolaire entre particules peut notablement modifier la réponse optique [120, 121]. Toutefois, pour des faibles densités, les nanoparticules peuvent être considérées comme indépendantes. L’absorption et la diffusion du système sont alors la somme des absorptions et diffusions individuelles. Les études optiques expérimentales ont été réalisées dans ces conditions, l’espacement entre chaque particule étant de 500 nm.

L’évaluation des relations de dispersion a mis en évidence la très grande sensibilité du spectre optique des nanotores métalliques à leur taille, à leur orientation ainsi qu’au milieu extérieur. Tous ces paramètres présentent expérimentalement des fluctuations qui peuvent être importantes d’un objet à l’autre. Lorsqu’un grand nombre de particules est illuminé simultanément par le faisceau incident, une réponse optique globale moyennée sur un large ensemble de d’objets est alors obtenue. Par rapport aux pics obtenus pour une particule isolée, cet effet se traduit généralement par un élargissement des pics d’extinction pour un ensemble de particules.

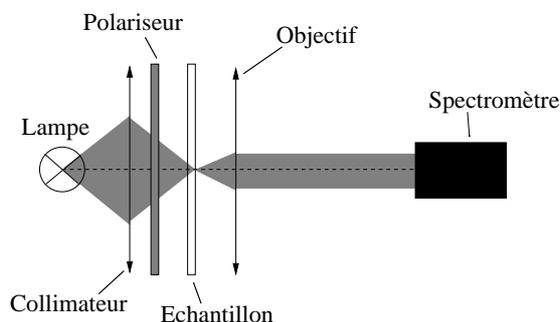


FIG. 6.7 – Dispositif permettant de mesurer l'extinction dû à l'échantillon.

Le spectre d'extinction est obtenu à l'aide d'un spectromètre couplé à un microscope optique conventionnel (Figure 6.7). Pour contrôler la polarisation du faisceau incident, un polariseur est inséré entre le collimateur et l'échantillon à caractériser. L'extinction est définie par $\log_{10}(T_0/T)$, où T est le signal transmis par la surface de verre avec les tores et $T_0 = 1$ est le signal transmis par la surface de verre en l'absence des particules. Les mesures d'extinction ont été obtenues pour des longueurs d'ondes comprises entre 400 et 1200 nm.

6.2.2 Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux

Incidence normale

Des mesures d'extinction optiques ont été accomplies sur un grand nombre d'échantillons. Les tores caractérisés possèdent des facteurs de forme d/R_{in} compris entre 0.45 et 1.14. Les expériences d'extinction optique ont été réalisées avec un faisceau incident normal à la surface des échantillons. Le champ électrique de l'onde incidente est donc parallèle au plan des tores. Cette configuration correspond à un champ appliqué planaire sur les tores métalliques. Les figures 6.8, présentent quatre spectres obtenus avec des tores caractérisés par $d/R_{in} = 1.139$ (tore t_1 : fig. a), 0.835 (tore t_2 : fig. b), 0.743 (tore t_3 : fig. c) et 0.65 (tore t_4 : fig. d). Sur chacun des spectres, une résonance apparaît clairement vers les grandes longueurs d'onde. Les dimensions employées montrent que la résonance se décale vers l'infrarouge si le facteur de forme devient petit. Nous pouvons remarquer également que la hauteur des pics varie avec le volume de la particule. A noter que la longueur d'onde de ce pic d'extinction n'est pas modifiée par la polarisation de l'onde. Le léger décalage observé entre les formes des courbes des polarisations x et y est significatif de l'asymétrie résiduelle des tores obtenus par nanofabrication.

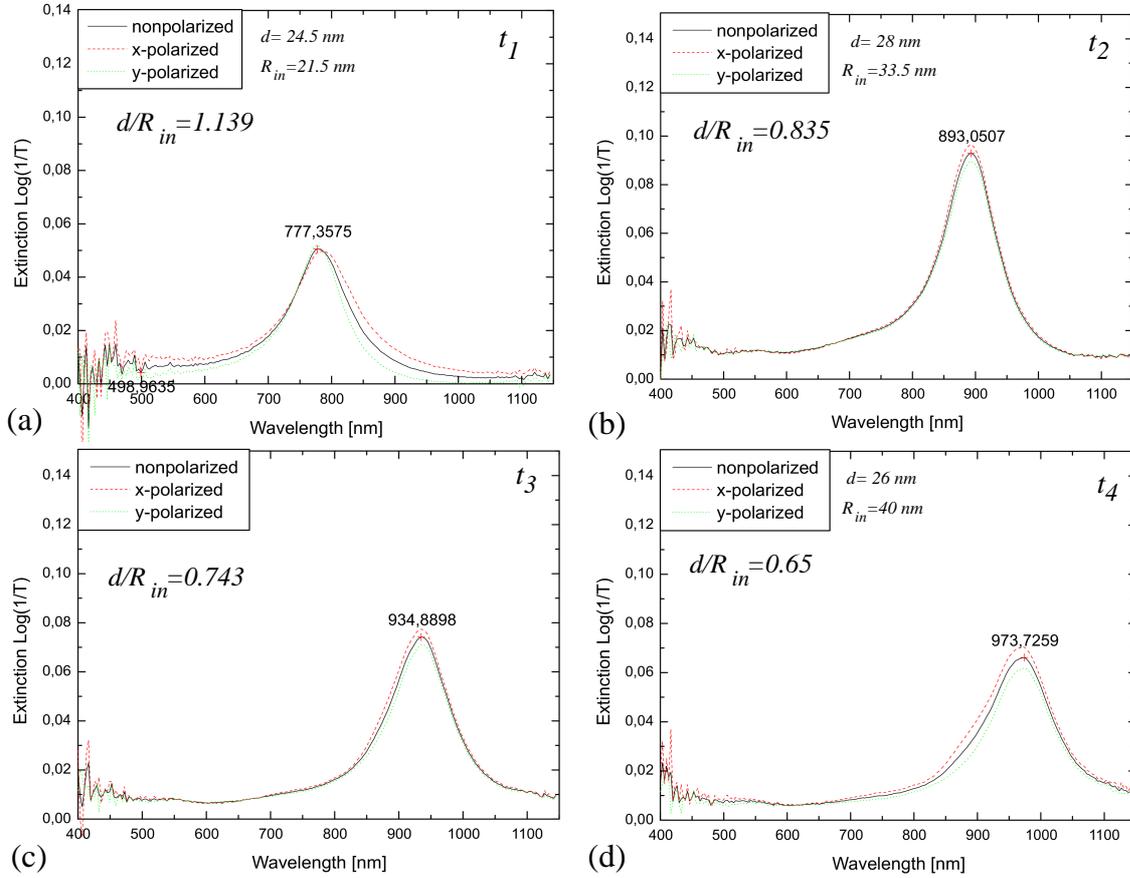


FIG. 6.8 – Spectres d’extinction expérimentaux sur différents tores d’or. (a) tore t_1 : $d/R_{in} = 1.139$. (b) tore t_2 : $d/R_{in} = 0.835$. (c) tore t_3 : $d/R_{in} = 0.743$. (d) tore t_4 : $d/R_{in} = 0.65$.

Les tores caractérisés expérimentalement se trouvent sur une surface de verre. L’environnement diélectrique est donc différent celui de l’air. Il est nécessaire de prendre en compte ce paramètre dans nos calculs puisque la surface de verre va induire une augmentation de la longueur d’onde de résonance. L’effet du substrat est introduit qualitativement dans l’expression analytique en considérant que les particules baignent dans un milieu homogène dont la fonction diélectrique effective est une moyenne pondérée des fonctions diélectriques respectives du substrat et du milieu ambiant. Pour un substrat de verre et un superstrat d’air, la fonction diélectrique du milieu homogène équivalent est généralement ajustée à 2.12 [71, 122].

Les figures 6.9 (a), 6.9 (b), 6.9 (c) et 6.9 (d) mettent respectivement en parallèle les sections efficaces C_{ext} calculées analytiquement et les spectres d’extinction expérimentaux

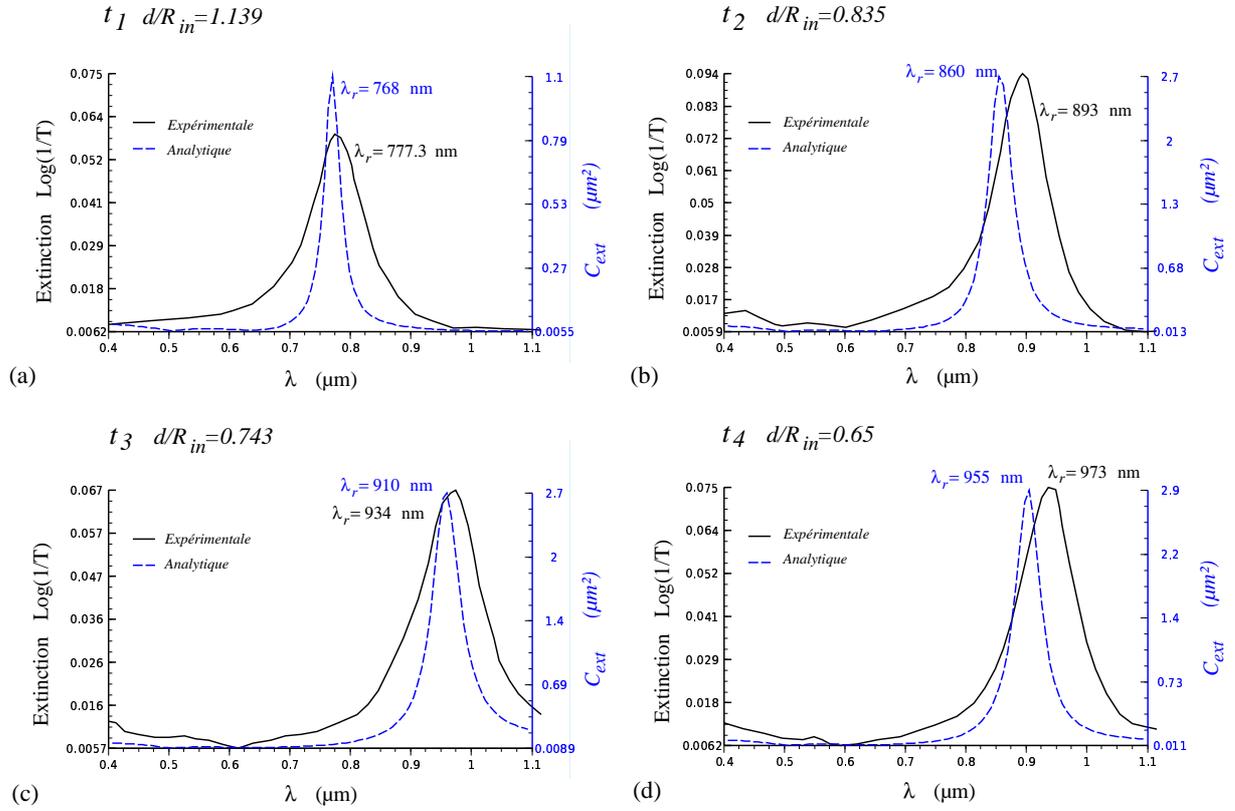


FIG. 6.9 – (a) Sections efficaces d’extinction calculées pour les tores expérimentaux t_1 , t_2 , t_3 et t_4 . (b) Fréquences de résonance théoriques (courbe en traits discontinus) et expérimentales (trait continu) du mode $M = 1$, $N = 0$.

pour les tores t_1 , t_2 , t_3 et t_4 . Les longueurs d’onde de résonance obtenues sont proches de celles expérimentales : t_1 : $\lambda_{res} = 768$ nm, t_2 : $\lambda_{res} = 860$ nm, t_3 : $\lambda_{res} = 910$ nm et t_4 : $\lambda_{res} = 955$ nm. Comparés au spectres analytiques, les spectres expérimentaux présentent des pics de résonance plus larges dûs à une mesure collective des tores.

Sur la figure 6.10, nous avons reporté les longueurs d’onde de résonances correspondantes à l’excitation du mode $M = 1$ $N = 0$ pour des tores dont d/R_{in} est compris entre 0.4 et 1.3 (courbe en trait plein). Nous y avons figuré la position des différentes résonances obtenues expérimentalement. En dépit des incertitudes expérimentales énoncées précédemment, nous voyons que la comparaison entre formule analytique et résultats expérimentaux est très satisfaisante. Expérimentalement, nous vérifions donc la forte dépendance de la résonance du mode $M = 1$ $N = 0$ au facteur de forme d/R_{in} .

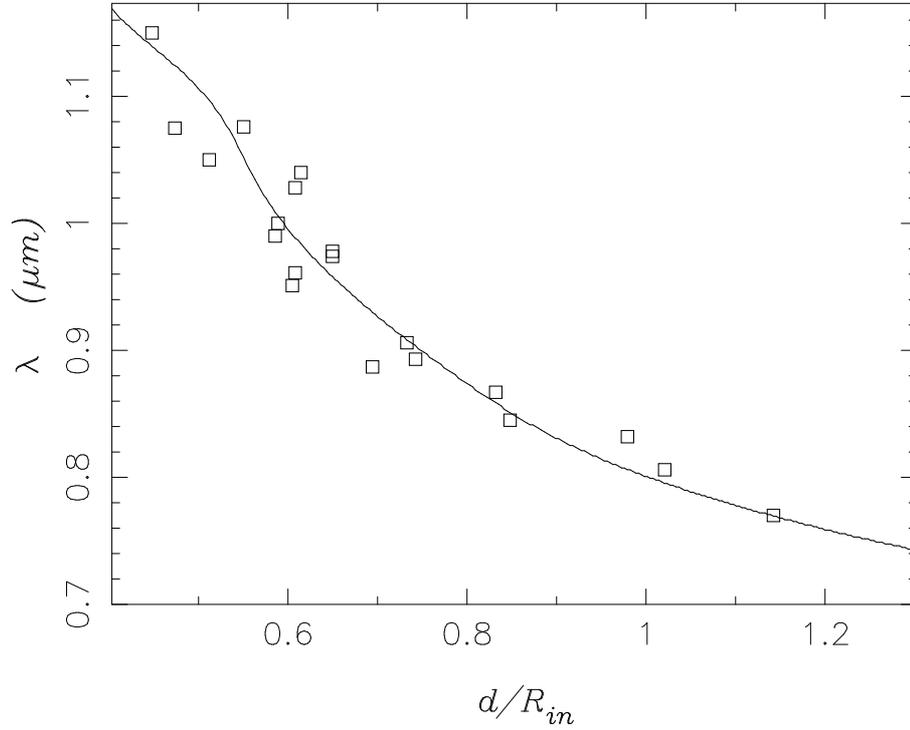


FIG. 6.10 – Longueurs d’onde de résonance en fonction du rapport d/R_{in} : la courbe en trait plein représente les longueurs d’onde obtenues analytiquement à partir de l’équation (4.58). Les carrés représentent les longueurs d’onde expérimentales.

Inclinaison de l’échantillon

Le dispositif expérimental permet d’incliner les échantillons d’un angle δ par rapport au champ électrique incident. Celui-ci possède donc une composante planaire $E_x = \mathbf{E}_0 \cdot \mathbf{e}_x$ et une composante axiale $E_z = \mathbf{E}_0 \cdot \mathbf{e}_z$ par rapport au plan défini par l’échantillon. Le champ appliqué sur les tores est donc :

$$\mathbf{E}_0 = E_x \mathbf{e}_x + E_z \mathbf{e}_z \quad (6.5)$$

$$= E_0 \cos \delta \mathbf{e}_x + E_0 \sin \delta \mathbf{e}_z \quad (6.6)$$

L’amplitude de chaque composante du champ dépend donc de la valeur de l’angle d’inclinaison δ du plan des tores. D’après les sections précédentes de ce chapitre, on s’attend donc à observer une résonance proche de 500 nm liée au mode $M = 0$ $N = 1$ excité par la composante axiale du champ, et une autre résonance vers de 821 nm, liée au mode $M = 1$ $N = 0$ excité par la composante planaire du champ.

Sur les figures 6.11 sont exposés les spectres d’extinction expérimentaux (a) et analy-

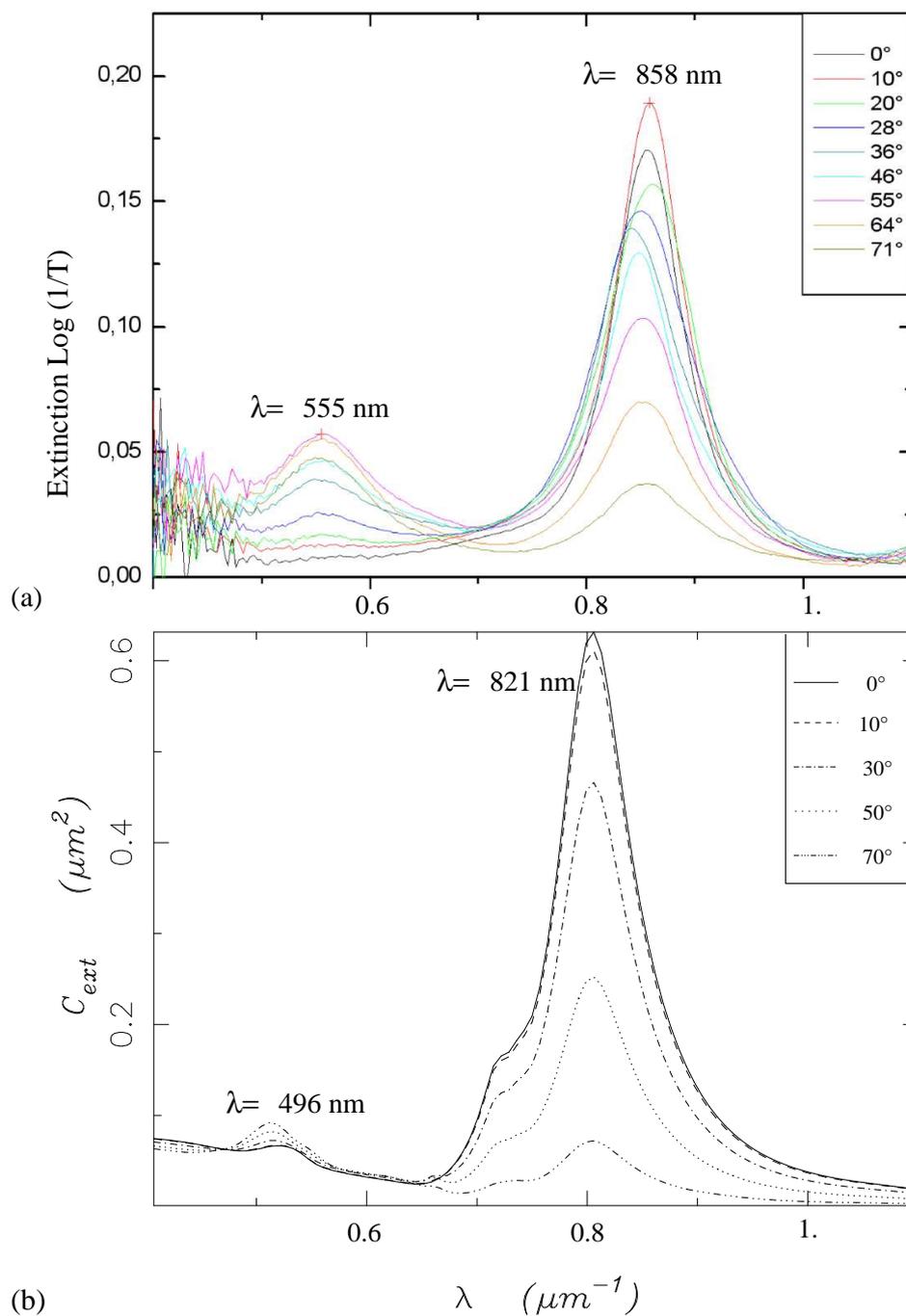


FIG. 6.11 – Spectres d'extinction expérimentaux (a) et analytiques (b) obtenus lors de l'inclinaison de l'échantillon par rapport au faisceau incident. Les tores expérimentaux utilisés pour ces mesures présentent un rapport $d/R_{in} \approx 1$. Analytiquement, nous avons pris $d/R_{in} = 1$.

tiques (b) obtenus en fonction de l'angle δ . Comme attendu, si le faisceau incident est normal au plan des tores, la résonance due à l'excitation du mode pair $M = 1$ $N = 0$ apparaît vers 858 nm expérimentalement. Analytiquement, le pic de résonance est centré autour de 821 nm. Lorsque le plan des tores est incliné, une seconde résonance due à l'excitation du mode impair $M = 0$ $N = 1$ apparaît. Analytiquement, la longueur d'onde de résonance est $\lambda = 496$ nm. Expérimentalement, cette résonance se trouve aux alentours de 555 nm. Cette différence en longueur d'onde est significative et peut être attribuée à la différence de forme entre les tores théoriques et les particules expérimentales. En effet, la méthode de lithographie par faisceau d'électrons ne permet pas de contrôler efficacement la forme des particules dans le plan axial. Les particules expérimentales ne sont pas parfaitement toriques et présentent des flancs droits provoquant probablement ce changement de fréquences.

6.3 Conclusions

Ce chapitre nous a permis premièrement de confronter le modèle analytique que nous avons développé dans les chapitres précédents aux résultats obtenus à l'aide d'une méthode numérique. La comparaison entre des spectres d'extinctions et des cartes de champs obtenues par les deux méthodes, permet de valider les approximations nécessaires pour l'étude analytique des propriétés optiques d'un nanotore métallique. Nous avons montré qu'un tore d'Or plongeé dans un champ électrique axial possédait une résonance au environ de 498 nm et que cette fréquence de résonance était très peu sensible au facteur de forme d/R_{in} . Toutefois, lorsque le champ exciteur est planaire, le mode plasmon excité possède une longueur d'onde de résonance situé dans le rouge et dans le proche infrarouge. Les calculs ont montré une très grande sensibilité de la fréquence de résonance de ce mode par rapport à la valeur de d/R_{in} . Nous avons également montré que la fréquence de résonance de ce mode est très sensible à l'indice de réflexion du milieu extérieur, et que cette sensibilité est d'autant plus importante que le tore est fin.

Enfin, une comparaison entre théorie et expérience a pu être possible grâce à la fabrication et la caractérisation de nanotores d'Or obtenus par méthode de lithographie électronique. Malgré la géométrie en anneau des particules expérimentales, un très bon accord a été trouvé entre les résultats analytiques et expérimentaux si le champ exciteur est planaire. Lorsque le champ appliqué sur la structure est axial, les différences de formes des particules étudiées expérimentalement et analytiquement se traduisent par une légère

discordance entre les longueurs d'onde de résonances expérimentales et théoriques.

Enfin, cette étude sur les spectres d'extinction de nanotubes d'Or isolés ne nous permet pas de mettre en évidence l'excitation du mode capable de soutenir un moment dipolaire magnétique non nul. Les différents calculs et simulations que nous avons entrepris ont montré que les modes excités à l'aide d'une onde plane sont ceux présentant un moment dipolaire électrique.

Conclusion et perspectives

Notre travail fut initialement motivé par la compréhension théorique du processus de détection du signal en microscopie de champ proche optique en configuration PSTM. En fonction de la nature du dipôle soutenu par la pointe, le signal détecté est différent. Si la nature de la pointe permet l'excitation d'un mode plasmon supportant un moment dipolaire électrique de forte amplitude, le signal enregistré est proportionnel à l'amplitude du champ électrique. Toutefois, si le mode plasmon de la pointe supporte un moment dipolaire magnétique supérieur au moment électrique, le signal enregistré est alors proportionnel à l'amplitude du champ magnétique [40, 42]. Aucun mélange du champ électrique et du champ magnétique n'a été détecté jusqu'à présent. Ce comportement fut alors interprété comme étant la manifestation indirecte du principe d'Heisenberg [43] en électromagnétisme du fait de la mesure sub-longueur d'onde réalisée par la sonde. Ces résultats expérimentaux ont entraîné des études afin de déterminer les conditions d'excitation du mode plasmon de la pointe responsable de la détection du champ magnétique [16]. Dans ce contexte, nous avons cherché à savoir si d'autres particules sont capables de soutenir un moment dipolaire magnétique aux fréquences optiques. De plus, le développement récent des matériaux à indices de réfraction négatifs aux fréquences optiques implique la mise en jeu de moments dipolaires magnétiques à ces fréquences.

Etant donné la forme des pointes de microscope de champ proche, nous nous sommes intéressés aux plasmons de surface supportés par des particules métalliques de géométrie torique. Dans un premier temps, l'étude du système de coordonnées toroïdales nous a montré que ce système de coordonnées ne permet pas la séparation de variables dans l'équation de Helmholtz tant vectorielle que scalaire. Toutefois, par l'introduction d'un facteur multiplicatif, ce système autorise la séparation de variables dans l'équation de Laplace, nous invitant alors à travailler dans le cadre de l'approximation non-retardée. Cette approximation limite donc notre étude aux tores de tailles très petites comparées aux longueurs d'ondes incidente. Dans ce régime non-retardé, nous avons réalisé en dé-

tail la séparation de variables dans l'équation de Laplace dans le système de coordonnées toroïdales. Cette séparation aboutit à l'introduction des fonctions de Legendre d'indices demi-entiers. Malgré leurs propriétés proches de celles des fonctions de Legendre d'indices entiers, l'évaluation de ces fonctions est délicate et nombres de méthodes d'évaluation directes divergent très rapidement. Notre étude ne fut possible que grâce à la mise au point en 2002 d'une méthode stable d'évaluation numérique des fonctions toroïdales [87].

Dans le cas d'une particule sphérique, l'application des conditions de raccord à la surface de la particule permet de trouver rapidement la relation de dispersion. Aisée pour ce système, cette application l'est moins lorsque la particule est torique. En effet, nous avons montré que ce même facteur responsable de l'impossibilité de la séparation de variables dans l'équation de Helmholtz, amène à la résolution d'un système d'équations infini lors de l'application des conditions de raccords aux solutions de l'équation de Laplace. Nous avons donc proposé une procédure permettant de découpler ce système. Cela nous a permis de trouver une expression générale des relations de dispersion des modes de plasmons de surface d'un tore métallique. Toutefois, il existe une infinité de combinaisons possibles entre les deux nombres quantiques M , N et l'ordre Π . Le nombre de modes propres possibles émerge donc comme infini.

Afin de montrer que seuls quelques modes propres interviennent dans les propriétés optiques des nanotores, nous avons cherché à résoudre le problème d'un nanotore métallique plongé dans un champ électrique uniforme et constant. Sur base de la géométrie du tore, nous avons étudié les deux orientations possibles du champ appliqué : planaire et axiale. Afin de circonscrire la complexité des problèmes, nous avons travaillé sur des tores fins, c'est-à-dire, des tores présentant des rapports d/R_{in} inférieurs à 1. Cette approximation des tores fins a permis de dégager des relations analytiques des sections efficaces de diffusion et d'extinction faisant apparaître de manière explicite deux relations de dispersion d'ordre 1 en fonction de la direction de champ appliqué considéré.

De manière générale, le couplage des modes propres d'une particule de taille sub-longueur d'onde avec un champ externe est décrit en première approximation par les termes dipolaires $\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}_0 + \mathbf{m} \cdot \mathbf{B}_0$. Les modes propres associés aux dipôles \mathbf{p} et \mathbf{m} contribuent le plus significativement aux propriétés optiques. Pour des particules toriques, nous avons évalué les relations de dispersion des modes propres d'ordre 1. Nous avons ensuite montré

que les modes propres d'ordre 1 ($M = 1 N = 0$ et $M = 0 N = 1$) soutiennent un moment dipolaire électrique non nul, justifiant le fait que ces deux modes interviennent dans les expressions des sections efficaces des tores.

Toutefois, en appliquant le calcul des moments dipolaires à d'autres modes, nous avons mis en évidence la capacité du mode propre impair $M = 1 N = 1$ à soutenir un moment dipolaire magnétique non nul et un moment dipolaire électrique nul aux fréquences optiques. Cependant, ce mode singulier est dégénéré avec le mode propre pair $M = 1 N = 1$ qui ne peut soutenir qu'un moment dipolaire électrique.

Le dernier chapitre a été consacré au recouplement des principaux résultats. La comparaison entre les valeurs des sections efficaces d'extinction analytique et numérique nous a permis d'apporter une première validation de nos approximations. Enfin, la fabrication et la caractérisation optique de nanotores d'Or obtenus par lithographie électronique a rendu possible une confrontation entre théorie et expérience. Un très bon accord a été trouvé lorsque le champ électrique est planaire, ce qui correspond à la situation expérimentale d'un faisceau en incidence normale. Cependant, une différence entre les longueurs d'onde de résonances expérimentales et théoriques a été observée lorsque l'échantillon est incliné par rapport au faisceau incident. Les modes plasmons étant très sensibles à la forme des particules, cette différence s'explique par l'impossibilité de créer des particules parfaitement toriques par la méthode de fabrication employée.

Enfin, nous avons évalué la sensibilité des fréquences de résonance des modes à la variation de l'indice de réflexion du milieu extérieur. Nous avons montré que la fréquence de résonance du mode propre excité par le champ électrique planaire est extrêmement sensible à cette variation. Nous avons pu démontrer que cette sensibilité est d'autant plus importante que le tore est fin. Cette très grande sensibilité suggère le fort potentiel des particules toriques dans la réalisation de biocapteurs à transduction optique.

La part la plus importante des perspectives dégagées par ce travail reste sans doute l'étude sur les conditions d'excitation du mode capable de soutenir un moment dipolaire magnétique non nul tout en annulant la valeur du moment électrique. Jusqu'à présent, nous n'avons étudié que des particules individuelles et leurs propriétés optiques. Il serait cependant intéressant de mener une étude sur le couplage entre deux nanotores. En effet, si deux particules sont suffisamment proches l'une de l'autre pour que leurs modes propres se recouvrent, la présence d'un champ électrique créé par l'une des particules modifie le

champ électrique de l'autre particule. Le champ total est donné par :

$$\mathbf{E}_{loc}(\vec{r}) = \mathbf{E}_0(\vec{r}) + \mathbf{E}_{p1}(\vec{r}) + \mathbf{E}_{p2}(\vec{r}) \quad (6.7)$$

où \mathbf{E}_0 est le champ incident, \mathbf{E}_{p1} et \mathbf{E}_{p2} correspondent aux champs diffusés par chaque particule.

Si chaque particule est suffisamment petite pour être approximée par un dipôle électrique, les champs $\mathbf{E}_{p,i=1,2}$ contiennent chacun trois termes : $\mathbf{E}_{near,i}$ qui correspond au terme de champ proche dû au dipôle électrique d'une particule, $\mathbf{E}_{rad,i}$ qui correspond au terme de champ lointain, et $\mathbf{E}_{int,i}$ correspondant au cas intermédiaire. Les termes $\mathbf{E}_{dipole,i}$ possèdent donc une dépendance en d^{-3} (d étant la distance séparant les deux dipôles), la dépendance de $\mathbf{E}_{rad,i}$ est en d^{-1} et celle de $\mathbf{E}_{int,i}$ est en d^{-2} [20]. Le terme de champ proche est fort à courtes distances tandis que celui du champ lointain domine à grandes distances. Cette remarque est importante puisqu'elle permet de différencier deux situations principales.

La première de ces situations correspond au cas où les deux particules sont suffisamment éloignées ($d > 100 \text{ nm}$) pour que les termes de champ proche soient négligeables. Le couplage entre chaque dipôle est alors très faible ce qui revient à considérer chaque particule comme isolée (Fig. 6.12a). Par analogie avec des particules de formes simples (sphères, cylindres), on peut supposer que le couplage entre deux tores placés à proximité va influencer la distribution de charge de chacun. En effet, lorsque que deux particules sont proches l'une de l'autre ($d < 100 \text{ nm}$), il y a interaction entre les charges négatives et les charges positives [123, 124, 125]. Cette interaction des dipôles en champ proche va entraîner un décalage en fréquence de la résonance par rapport à la situation de la particule isolée (Fig. 6.12a) [126, 127]. Sur la figure 6.12(b) est représenté le cas où deux particules couplées possèdent une polarisation parallèle à leur alignement. Les charges négatives de la particule de gauche vont alors interagir fortement avec les charges positives de la seconde particule. Cette interaction attractive va affaiblir les forces de répulsion entre chaque particule. Ce phénomène entraîne alors un décalage vers les basses fréquences de la résonance. De plus, sur la distance qui sépare les particules, une différence de potentiel importante apparaît entraînant une forte augmentation du champ électrique [128, 129]. Si le champ appliqué au système est perpendiculaire à l'alignement des particules (Fig. 6.12(c)), les forces de répulsion internes sont renforcées par l'action des particules voisines entraînant une augmentation de la valeur de la fréquence de résonance. L'interaction en champ proche de deux particules couplées entraîne donc une levée de dégénérescence des fréquences de résonance.

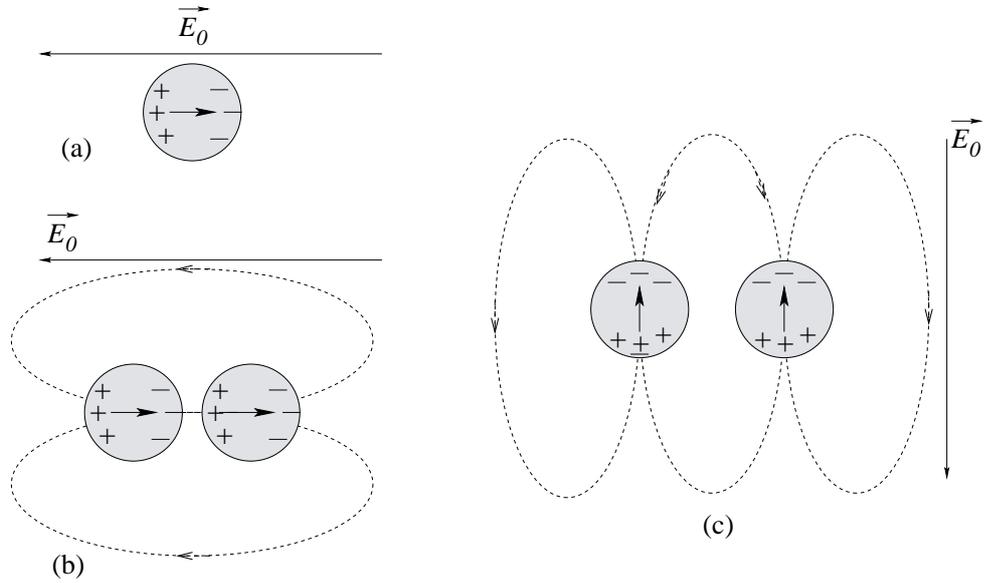


FIG. 6.12 – (a) Cas d'une particule isolée. Couplage du champ proche de deux particules. (b) Polarisation parallèle. (c) Polarisation perpendiculaire

On peut donc espérer obtenir par cette méthode un pic de résonance relatif au mode soutenant le dipôle magnétique distinct du pic de résonance relatif au mode soutenant le dipôle électrique. Malheureusement, il n'existe pas de solution analytique dans les équations de Maxwell pour une géométrie si complexe. Le recours aux simulations numériques est nécessaire mais nous nous confrontons à une autre difficulté. Dans la méthode de Green, un nombre très important de cellules de discrétisation doit être utilisé pour rendre compte des effets de proximité. Avec les calculateurs actuels, cela représente un temps de calcul ainsi qu'une occupation mémoire non raisonnable. Il est alors nécessaire de recourir à des méthodes numériques plus adaptées au cas des particules présentant des bords arrondis [130, 126].

La méthode la plus simple pour exciter un mode propre particulier est d'utiliser une onde incidente, dont la structure de champ possède un recouvrement maximal avec la structure de champ lié au mode. La structure du mode propre impair d'ordre 1 $M = 1$ $N = 1$ est complexe comparée à celle des deux modes excités par un champ uniforme (figure 5.8). Le moment dipolaire magnétique non nul provient du déphasage des champs électriques existant entre les sections du tore. Le champ incident doit donc être polarisé selon l'axe z et présenter une inversion de phase entre les deux sections du tore. Cette distribution spatiale du champ électrique peut être réalisée en focalisant une onde plane

à l'aide d'une lentille à forte ouverture numérique, à travers une interface plane séparant deux milieux d'indices de réfraction différents [131, 132]. Une telle distribution spatiale du champ électrique peut être également obtenu en utilisant un des modes d'un laser de Gauss-Laguerre [133].

Toutefois, du fait de la complexité des systèmes envisagés pour l'excitation du moment dipolaire magnétique, la validation de telles études nécessite le recoupement avec des résultats expérimentaux qui restent assez rares jusqu'à présent.

Bibliographie

- [1] R. Corriu, P. Nozieres, and C. Weisbuch. *Nanosciences - Nanotechnologies*. Academies des Sciences, France, Avril 2004.
- [2] R.W. Siegel, E. Hu, and M.C. Roco. Nanostructure Science and Technology. *WTEC Panel Report*, August 1999.
- [3] B. Lamprecht, J. R. Krenn, G. Schider, H. Ditlbacher, M. Salerno, N. Felidj, A. Leitner, F. R. Aussenegg, and J. C. Weeber. Surface plasmon propagation in microscale metal stripes. *App. Phys. Lett.*, 79(1), 2001.
- [4] J. C. Weeber, Y. Lacroute, and A. Dereux. Optical near-field distributions of surface plasmon waveguide modes. *Phys. Rev. B*, 68(115401), 2003.
- [5] W.L. Barnes, A. Dereux, and T. W. Ebbesen. Surface plasmon sub-wavelength optics . *Nature*, 424:824–830, 2003.
- [6] M. Quinten, A. Leitner, J. R. Krenn, and F. R. Aussenegg. Electromagnetic energy transport via linear chains of silver nanoparticles. *Optics Letters*, 23(17):pp. 1331–1333, 1998.
- [7] S. I. Bozhevolnyi, V. S. Volkov, E. Devaux, J. Laluet, and T. W. Ebbesen. Channel plasmon subwavelength waveguide components including interferometers and ring resonators. *Nature*, 440:508–511, Mar 2006.
- [8] N. Engheta, A. Salandrino, and A. Al. Circuit Elements at Optical Frequencies: Nanoinductors, Nanocapacitors and Nanoresistors. *Phys. Rev. Lett.*, 95(095504), August 2005.
- [9] G. V. Eleftheriades, A. K. Iyer, and P. C. Kremer. Planar negative refractive index media using periodically l-c loaded transmission lines. *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.*, 50(2702), 2002.
- [10] N. Engheta A. Alu, A. Salandrino. Negative effective permeability and left-handed materials at optical frequencies. *Optics Express*, 14:1557–1567, 2006.
- [11] J. Dintinger, S. Klein, F. Bustos, W. L. Barnes, and T. W. Ebbesen. Strong coupling

- between surface plasmon-polaritons and organic molecules in subwavelength hole arrays. *Phys. Rev. B*, 71(035424), 2005.
- [12] S.A. Maier, M. L. Brongersma, P. G. Kik, S. Melter, A. A. G. Requicha, and H. A. Atwater. Plasmonics - a route to nanoscale optical devices. *Advanced Materials*, 13:1501–1505, 2001.
- [13] J. C. Weeber, E. Bourillot, A. Dereux, J. P. Goudonnet, Y. Chen, and C. Girard. Observation of light confinement effects with a near-field optical microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 77(27):5332–5335, December 1996.
- [14] E. Devaux, A. Dereux, E. Bourillot, J. C. Weeber, Y. Lacroute, J. P. Goudonnet, and C. Girard. Local detection of the optical magnetic field in the near zone of dielectric samples. *Phys. Rev. B*, 62:10504–10514, 2000.
- [15] E. Devaux, A. Dereux, E. Bourillot, J. C. Weeber, Y. Lacroute, J. P. Goudonnet, and C. Girard. Detection of the optical magnetic field by circular symmetry plasmons. *Appl. Surf. Sci.*, 164:124–130, 2000.
- [16] U. Schröter and A. Dereux. Surface plasmon polaritons on metal cylinders with dielectric core. *Phys. Rev. B*, 64:125420 (10 pages), 2001.
- [17] J. B. Pendry. Negative refraction makes a perfect lens. *Phys. Rev. Lett.*, 85(3966), 2000.
- [18] K. Lance Kelly, E. Coronado, L. L. Zhao, and G. C. Schatz. The optical properties of metal nanoparticles: The influence of size, shape and dielectric environment. *J. Phys. Chem. B*, 107:668–677, 2003.
- [19] E. Lifchitz L. Landau. *ElectromagnÃtisme des milieux continus*, volume 8. Editions MIR, 1969.
- [20] J.D. Jackson. *Classical Electromagnetism*. John Wiley, New York, 2nd edition, 1975.
- [21] J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbins, and W. J. Stewart. Magnetism from Conductors and Enhanced Non-Linear Phenomena. *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.*, 47:2075, 1999.
- [22] V. G. Veselago. The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of epsilon and mu. *Sov. Phys. Usp.*, 10(509), 1968.
- [23] M. W. McCall, A. Lakhtakia, and W. S. Weiglhofer. The negative index of refraction demystified. *European Journal of Physics*, 23:353, 2002.
- [24] G. Dolling, C. Enkrich, M. Wegener, C. M. Soukoulis, and S. Linden. Simultaneous negative phase and group velocity of light in a metamaterial. *Science*, 312(5775):pp. 892 – 894, May 2006.

- [25] J. A. Kong, B. Wu, and Y. Zhang. Lateral displacement of a Gaussian beam reflected from a grounded slab with negative permittivity and permeability. *Appl. Phys. Lett.*, 80(2084), 2002.
- [26] D. L. Mills and E. Burstein. Polaritons: the electromagnetic modes of media. *Rep. Prog. Phys.*, 37:817–926, 1974.
- [27] R. E. Camley and D. L. Mills. Collective excitations of semi-infinite superlattice structures: Surface plasmons, bulk plasmons, and the electron-energy-loss spectrum. *Phys. Rev. B*, 29:1695–1706, 1984.
- [28] S Anantha Ramakrishna. Physics of negative refractive index materials. *Rep. Prog. Phys.*, 68:449–521, 2005.
- [29] J. B. Pendry, D. Schurig, and D. R. Smith. Controlling electromagnetic fields. *Science*, 312(5781):pp. 1780 – 1782, June 2003.
- [30] D. R. Smith, Willie J. Padilla, D. C. Vier, S. C. Nemat-Nasser, and S. Schultz. A Composite medium with simultaneously negative permeability and permittivity. *Phys. Rev. Lett.*, 84(4184), 2000.
- [31] R. Shelby, D. R. Smith, and S. Schultz. Experimental verification of a negative index of refraction . *Science*, 292(77), 2001.
- [32] N. Fang, H. Lee, C. Sun, and X. Zhang. Sub Diffraction-Limited Optical Imaging with a Silver Superlens . *Science*, pages 534–537, April 2005.
- [33] A. N. Drigorenko, A. K. Geim, H. F. Gleeson, Y. Zhang, A. A. Firsov, I. Y. Khrushchev, and J. Petrovic. Nanofabricated media with negative permeability at visible frequencies. *Nature*, 438:335–338, nov 2005.
- [34] S. Linden, C. Enkrich, M. Wegener, J. Zhou, T. Koschny, and C. M. Soukoulis. Magnetic Response of Metamaterials at 100 Terahertz. *Science*, 306:1351–1353, 2004.
- [35] J. Zhou, TH. Koschny, M. Kafesaki, E. N. Economou, J. B. Pendry, and C. M. Soukoulis. Saturation of the Magnetic Response of Split-Ring Resonators at Optical Frequencies. *Phys. Rev. Letters*, 95(223902), nov 2005.
- [36] D. R. Smith, D. C. Vier, TH. Koschny, and C. M. Soukoulis. Electromagnetic parameter retrieval from inhomogeneous metamaterials. *Phys. Rev. E*, 71(036617), 2005.
- [37] V. M. Shalaev, W. Cai, U. K. Chettiar, H. Yuan, A. K. Sarychev, V. P. Drachev, and A. V. Kildishev. Negative index of refraction in optical metamaterials. *Opt. Lett.*, 30:3356–3358, 2005.

- [38] A. K. Sarychev, G. Shvets, and V. M. Shalaev. Magnetic plasmon resonance. *Phys. Rev. E*, 73(36609), 2006.
- [39] J. C. Weeber. *Diffraction en champ proche optique. Analyse des images de microscopie á effet tunnel optique*. PhD thesis, Universit de Bourgogne, Dijon, December 1996.
- [40] E. Devaux, A. Dereux, J.C. Weeber, E. Bourillot, J.P. Goudonnet, and C. Girard. Local-detection of the optical magnetic field by circular symmetric plasmons. *Phys. Rev. B*, 62(10504), 2000.
- [41] E. Devaux. *Détection du champ magnétique optique au voisinage de nanostructures*. PhD thesis, Université de Bourgogne, Dijon, October 2000.
- [42] E. Devaux, A. Dereux, J.C. Weeber, E. Bourillot, J.P. Goudonnet, and C. Girard. Detection of the optical magnetic field by circular symmetry plasmons. *App. Surf. Science*, 164:124–130, 2000.
- [43] W. Heisenberg. *Physical Principles of Quantum Theory*. Dover, New York, 1930. Reprint of the original edition known as "Chicago Lectures".
- [44] M. Born and E. Wolf. *Principles of optics*. Cambridge University Press, 1964.
- [45] B.H. Bransden and C.J. Joachain. *Physics of Atoms and Molecules*. Prentice Hall, second edition edition, 2003.
- [46] P. F. Liao, J. G. Bergman, D. S. Chemla, A. Wokaun, J. Melngailis, A. M. Hawrylu, and N. P. Economou. Surface-enhanced raman scattering from microlithographic silver particle surfaces. *Chem. Phys. Letters*, 82(2), 1981.
- [47] M. Kerker, D.S. Wang, H. Chew, O. Siiman, and L.A. Bumm. *Surface Enhanced Raman Scattering*. Plenum Press: New York, 1982.
- [48] P.M. Morse and H. Feshbach. *Methods of Theoretical Physics*. Mc Graw-Hill, New York, 1953.
- [49] J. A. Stratton. *Electromagnetic theory*. McGraw–Hill, New York, 1941.
- [50] I. A. Stegun M. Abramowitz. *Handbook of mathematical functions*. Dover Publications, Inc., New-York, 1972.
- [51] F. E. Harris. Spherical Bessel Expansions of Sine, Cosine, and Exponential Integrals. *Appl. Numer. Math.*, 34:95–98, 2000.
- [52] G. Arfken. *Mathematical methods for physicists*. Academic Press, San Diego, third edition, 1985.
- [53] G. Mie. Beiträge zur optik trüber medien, speziell kolloidaler metallösungen,. *Ann. Phys. IV.*, 25:377–445, 1908.

- [54] P. Debye. Der Lichtdruck auf Kugeln von beliebigem Material. *Ann. der Physik IV*, 30:57–136, 1909.
- [55] M. Kerker. *The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation*. New York Academic Press, 1969.
- [56] R. Ruppin. Optical properties of small spheres. *Phys. Rev. B*, 11(8), April 1975.
- [57] J. V. Dave. Scattering of electromagnetic radiation by a large, absorbing sphere. *IBM J. Res. Dev.*, 13(3):302–313, 1969.
- [58] J. V. Dave. Coefficients of the Legendre and Fourier series for the scattering functions of spherical particles. *Appl. Opt.*, 9(8)(1888-1896), 1970.
- [59] W. J. Wiscombe. Improved Mie scattering algorithms. *Appl. Opt.*, 19(9)(1505-1509), 1980.
- [60] C. F. Bohren. Recurrence relations for the Mie scattering coefficients. *J. Opt. Soc.*, 4(3):612–613, 1987.
- [61] U. Kreibig and M. Vollmer. *Optical properties of Metal Clusters*. Springer, New York, 1994.
- [62] S. W. Prescott and P. Mulvaney. Gold nanorod extinction spectra. *Journal of Applied Physics*, 99(123504), 2006.
- [63] Ashley and Emerson. Dispersion relation for non-radiative surface plasmons on cylinders. *Surf. Science*, 41:615–618, 1974.
- [64] C. A. Pfeiffer, E. N. Economou, and K. L. Ngai. Surface polaritons in a circularly cylindrical interface: Surface plasmons. *Phys. Rev. B*, 10:3038, 1974.
- [65] G. C. Aers, A. D. Boardman, and B. V. Paranjape. Non-radiative surface plasmon-polariton modes of inhomogeneous metal circular cylinder. *J. Phys. F*, 10:53–65, 1980.
- [66] H. Khosravi, D. R. Tilley, and R. Loudon. Surface polaritons in cylindrical optical fibers. *J. Opt. Soc. Am. A*, 8:112, 1991.
- [67] A. D. Boardman, editor. *Electromagnetic surface modes*. Wiley, New York, 1982.
- [68] E. W. Hobson. *The Theory of Spherical and Ellipsoidal Harmonics*. Chelsea, New-York, 1955.
- [69] Bateman. *Higher Transcendental Functions*, volume I. Mac-Graw-Hill, New-York, 1953.
- [70] J. D. Love. The Dielectric Ring in an Uniform, Axial, Electrostatic Field. *Journal of Mathematical Physics*, 13(9):1297, september 1972.

- [71] J. Aizpurua, P. Hanarp, D. S. Sutherland, M. Käll, Garnett W. Bryant, and F. J. Garcia de Abajo. Optical Properties of Gold Nanorings. *Physical Review Letters*, 90(5), february 2003.
- [72] E. Prodan and P. Nordlander. Structural tunability of the plasmon resonances in metallic nanoshells. *Nano Letters*, 3(4):543, 2003.
- [73] A. L. Aden and M. Kerker. Scattering of electromagnetic waves from two concentric spheres. *J. Appl. Phys*, 22(1242), 1951.
- [74] E. Prodan, C. Radloff, N. J. Halas, and P. Nordlander. A hybridization model for the plasmon response of complex nanostructures. *Science*, 302:419, October 2003.
- [75] N. R. Jana, L. Gearheart, and C. J. Murphy. Wet chemical synthesis of high aspect ratio cylindrical gold nanorods. *J. Phys. Chem. B*, 105(4065), 2001.
- [76] S. R. Nicewarner-Pena, R. G. Freeman, B. D. Reiss, Lin He, D. J. Pena, I. D. Walton, R. Cromer, C. D. Keating, and M. J. Natan. Submicrometer metallic barcodes. *Science*, 294(137-141), 2001.
- [77] S. J. Oldenburg, R. D. Averitt, S. L. Westcott, and N. J. Halas. Nanoengineering of optical resonances. *Chemical Phys. Lett.*, 288(2-4), 1998.
- [78] C. Graf and A. van Blaaderen. Metallodielectric colloidal core-shell particles for photonic applications. *Langmuir*, 18:524–534, 2002.
- [79] Yugang Sun and Younan Xia. Shape-controlled synthesis of gold and silver nanoparticles. *Science*, 298:2176–2179, 2002.
- [80] N.N Lebedev. *Special Functions and Their Applications*. Dover Publications, Inc., New York, 1972.
- [81] P. Moon and D. E. Spencer. *Field Theory Handbook*. Springer, 2nd edition, 1971.
- [82] W. R. Smythe. *Static and Dynamix Electricity*. Hemisphere, 3rd edition, 1989.
- [83] D. E. Amos. A portable package for Bessel functions of a complex argument and nonnegative portable package for Bessel functions of a complex argument. *Association for Computing Machinery - Trans. Math. Software*, 12:265, 1986.
- [84] W. Gaustchi. Legendre functions for arguments larger than one. *Communications of the Association for Computing Machinery*, 8(8):488, 1965.
- [85] A. Gil and J. Segura. Evaluation of Legendre functions of argument greater than one. *Comput. Phys. Comm.*, 105:267, 1997.
- [86] A. Gil and J. Segura. A Code to Evaluate Prolate and Oblate Spheroidal Harmonics. *Comput. Phys. Comm.*, 108:267, 1998.

- [87] J. Segura and A. Gil. Evaluation of toroidal harmonics. *Computer Physics Communications*, 124:104–122, 2000.
- [88] M. Hoyles, S. Kuyucak, and S.-H. Chung. Computer simulation of ion conductance in membrane channels. *Phys. Rev. E.*, 58(3654-3661), 1998.
- [89] N. M. Temme. *Special functions: An Introduction to the Classical Functions of Mathematical Physics*. John Wiley and Sons, 1996.
- [90] W. B. Jones and W. J. Thron. *Continued Fractions: Analytic Theory and Applications*. Addison-Wesley, 1980.
- [91] W.H. Press, B.P. Flannery, S.A. Teukolsk, and W.T. Vetterling. *Numerical recipes - The art of scientific computing*. Cambridge University Press, 1986.
- [92] S. Pincherle. *Sur les fractions continues algébriques.*, volume VI, 145-152. Annales Scientifiques de l'École Normale Supérieure, 1889.
- [93] S. Elaydi. *An Introduction to Difference Equations*. Springer, 3er edition, 2005.
- [94] B. C. Carlson and E. M. Notis. Algorithms for incomplete elliptic integrals. *Association for Computing Machinery - Trans. Math. Software*, 7(398), 1981.
- [95] S. Iyanaga and Kawada. *Encyclopedic Dictionary of Mathematics*, volume p. 1468, 1980. MIT Press, Cambridge.
- [96] A. Mary, A. Dereux, and T. L. Ferrell. Localized surface plasmons on a torus in the nonretarded approximation. *Phys. Rev. B*, 72, 2005.
- [97] I. Stakgold. *Green's Functions and Boundary Value Problems*. Wiley-Interscience Publications, New York, USA, 1979.
- [98] P. K. Aravind, A. Nitzan, and H. Metiu. The interaction between electromagnetic resonances and its role in spectroscopic studies of molecules adsorbed on colloidal particles or metal spheres. *Surface Science*, 110, 1981.
- [99] A. J. Hallock, P. L. Redmond, and L. E. Brus. Optical forces between metallic particles. *PNAS*, November 2004.
- [100] J. A. Hernandez and A. K. T. Assis. Electric potential for a resistive toroidal conductoe carrying a steady azimuthal current. *Phys. Rev. E*, 68(046611), 2003.
- [101] E. D. Palik. *Handbook of Optical Constants of Solids*. Academic, San Diego, CA, 1985.
- [102] D. Aspnes. *Spectroscopic ellipsometry of solids-new developments*. North Holland, 1976.

- [103] P. B. Johnson and R. W. Christy. Optical constants of the noble metals. *Phys. Rev. B*, 6:4370, 1972.
- [104] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and B. P. Flannery. *Numerical Recipes in Fortran*. Cambridge University Press, Cambridge, 1992.
- [105] K. L. Kliewer and R. Fuchs. Theory of dynamical properties of dielectric surfaces. *Advances in Chemical Physics*, 27:355–541, 1974.
- [106] R. Ruppin. Surface modes and optical absorption of a small sphere above a substrate. *Surf. Sci.*, 127:108, 1983.
- [107] T. Takemori, M. Inoue, and K. Ohtaka. To be completed. *J. Phys. Soc. Japan*, 56:1587, 1987.
- [108] I. S. Gradshteyn and I.M. Ryzhik. *Table Of Integrals Series and Products*. Academic Press, 1965.
- [109] J.P. Kottmann and O.J.F. Martin. Influence of the cross section and permittivity on the plasmon-resonance spectrum of silver nanowires. *Appl. Phys. B*, 73:299–304, 2001.
- [110] Martin Moskovits. Surface-enhanced spectroscopy. *Rev. Mod. Phys.*, 57:783–826, 1985.
- [111] A. Campion and P. Kambhampati. Surface-enhanced raman scattering. *Chem. Soc. Rev.*, 27:241, 1998.
- [112] G. Laurent, N. Fällidj, J. Grand, J. Aubard, G. Lällvi, A. Hohenau, F. R. Aussenegg, and J. R. Krenn. Raman scattering images and spectra of gold ring arrays. *Phys. Rev. B*, 73(245417), 2006.
- [113] J. Homola, S. S. Yee, and G. Gauglitz. Surface plasmon resonance sensors: review. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 54:3–15, 1999.
- [114] E. Kretschmann and H. Raether. *Z. Naturforsch*, 239:2135, 1963.
- [115] A. J. Haes and R. P. Van Duyne. A nanoscale optical biosensor: Sensitivity and selectivity of an approach based on the localized surface plasmon resonance spectroscopy of triangular silver nanoparticles. *J. Am. Chem. Soc*, 124:10596–10604, 2002.
- [116] G. Raschke, S. Kowarik, T. Franzl, C. Sännichsen, T. A. Klar, and J. Feldmann. Biomolecular recognition based on single gold nanoparticle light scattering. *Nano Letters*, 3:935–938, 2003.
- [117] A. D. McFarland and R. P. Van Duyne. Single silver nanoparticles as real-time optical sensors with zeptomole sensitivity. *Nano Letters*, 3(1057-1062), 2003.

- [118] T. R. Jensen, M. L. Duval, K. L. Kelly, A. A. Lazarides, G. C. Schatz, and R. P. Van Duyne. Nanosphere lithography: Effect of the external dielectric medium on the surface plasmon resonance spectrum of a periodic array of silver nanoparticles. *J. Phys. Chem. B*, 103:9846–9853, 1999.
- [119] Y. Chen and A. Pepin. Nanofabrication: Conventional and nonconventional methods. *Electrophoresis*, 22, 2001.
- [120] U. Kreibig and M. Vollmer. *Optical properties of metal clusters*, volume 25 of *Springer Series in Material Sciences*. Springer, Berlin, 1995.
- [121] U. Kreibig and L. Genzel. Optical absorption of small metallic particles. *Surf. Sci.*, 156(Part 2):678–700, 1985.
- [122] J. R. Krenn, A. Dereux, J.-C. Weeber, E. Bourillot, Y. Lacroute, J.-P. Goudonnet, G. Schider, W. Gotschy, A. Leitner, F. R. Aussenegg, and C. Girard. Squeezing the optical near-field zone by plasmon coupling of metallic nanoparticles. *Phys. Rev. Lett.*, 82:2590, 1999.
- [123] S. A. Maier, P. G. Kik, , and H. A. Atwater. Optical pulse propagation in metal nanoparticle chain waveguides. *Phys. Rev. B*, 67(205402), 2003.
- [124] W.Rechberger, A.Hohenau, A.Leitner, J.R.Krenn, B.Lamprecht, and F.R.Aussenegg. Optical properties of two interacting gold nanoparticles. *Opt. Commun.*, 220(137), 2003.
- [125] J. Aizpurua, G. W. Bryant, L. J. Richter, F. J. Garcia des Abajo, B. K. Kelly, and T. Mallouk. Optical properties of coupled metallic nanorods for field-enhanced spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 71(235420), 2005.
- [126] U. Hohenester and J.R. Krenn. Surface plasmon resonances of single and coupled metallic nanoparticles: A boundary integral method approach. *Phys. Rev. B*, 72(195429), 2005.
- [127] K.H. Su, Q.H. Wei, , X. Zhang, J. Mock, D. R. Smith, and S. Schultz. Interparticle coupling effects on plasmon resonances of nanogold particles. *Nano Letters*, 3(1087–1090), 2003.
- [128] H. Xu, J. Aizpurua, M. Käll, and P. Apell. Electromagnetic contributions to single-molecule sensitivity in surface-enhanced raman scattering. *Phys. Rev. E*, 62:4318–4324, 2000.
- [129] L. Gunnarsson, E. J. Bjerneld, S. Petronis H. Xu, B. Kasemo, and M. KÅd’ll. Interparticle coupling effects in nanofabricated substrates for surface-enhanced raman scattering. *Appl. Phys. Lett.*, 78:802–804, 2001.

- [130] F. J. Garcia de Abajo and A. Howie. Retarded field calculation of electron energy loss in homogeneous dielectrics. *Phys. Rev. B*, 65, March 2002.
- [131] P. Torok, P. Varga, Z. Laczik, and G. R. Booker. Electromagnetic diffraction of light focused through a planar interface between materials of mismatched refractive indices: an integral representation. *J. Opt. Soc. Am. A*, 12(2), 1995.
- [132] D. W. Diehl and T. D. Visser. Phase singularities of the longitudinal field components in the focal region of a high-aperture optical system. *J. Opt. Soc. Am. A*, 21(11), 2004.
- [133] L. Allen et al. *Progress in Optics*, volume XXXIX. E. Wolf, University of Rochester, Rochester, NY, USA, 2005.
- [134] E.N. Economou. *Green's functions in quantum physics*, volume 7 of *Springer Series in Solid-State Science*. SP:adr, second edition, 1983.
- [135] J. Tominaga and D. P. Tsai (Eds). *Optical Nanotechnologies. The Manipulation of Surface and Local Plasmons*. Springer, 2003.

Table des figures

0.1	Vitesse et taille des composants : la plasmonique face à la photonique et à l'électronique.	11
1.1	Réfraction négative par un matériau à indice négatif : l'angle de réfraction ainsi que le sens du vecteur d'onde s'inverse par rapport à une réfraction positive.	23
1.2	Schéma d'une lentille de Pendry-Veselago créée à partir d'un milieu d'indice $n_2 = -1$	25
1.3	Relation d'incertitude d'Heisenberg	28
1.4	Diffusion par une particule	30
1.5	Diffusion de Mie : diffusion d'une onde incidente $E_{inc}^{\vec{}}$ par une sphère de rayon a , de constante diélectrique ϵ_2 et d'une perméabilité magnétique μ_2 . Le milieu extérieur est caractérisé par ϵ_1 et μ_1	39
1.6	Fréquences des modes de plasmon pour des ellipsoïdes d'or (modèle de Drude).	46
1.7	Cylindre diélectrique recouvert de métal. Courbes de dispersion d'un cylindre diélectrique métallisé avec l'or.	47
1.8	Moments dipolaires électrique et magnétique calculés aux fréquences du mode $m = 1$ d'un cylindre de verre de rayon 80 nm et métallisé avec 32 nm d'Or.	49
1.9	Fréquences des modes $m = 1$, $m = 2$ et $m = 3$ d'un anneau d'or en fonction du rapport d/R_{ext} . La fonction diélectrique du métal est décrite par le modèle de Drude. Le milieu extérieur est de l'air. Les modes symétriques (ω_-) correspondent aux branches de basses fréquences, alors que les modes antisymétriques (ω_+) correspondent aux branches de hautes fréquences. . .	51
1.10	Représentations schématique des distributions superficielles des charges dans un anneau pour les modes $m = 1$, $m = 2$, $m = 3$ symétriques (a) et antisymétriques (b)	52

2.1	Construction des coordonnées bipolaires: ce système de coordonnées est construit à partir du problème de deux cylindres portés à des potentiels égaux en valeur absolue et de signes opposés, placés en $-a$ et $+a$	54
2.2	Coordonnées toroïdales: schéma des surfaces définies par q_1, q_2, q_3 constantes.	57
2.3	Intersection des surfaces définies pour plusieurs valeurs de q_1 et de q_2 avec le plan $q_3 = 0$	58
2.4	$q_1 = q_1^0 = \text{constante}$ et a définissent la surface d'un tore. L'épaisseur d , et les rayons intérieurs R_{in} et extérieurs R_{out} sont alors définis à partir de ces deux constantes	59
2.5	Fonctions de Legendre à indices demi-entiers $P_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ pour $m = 0,1,2$ and $n = 0$ (trait continu), $n = 1$ (trait discontinu), $n = 2$ (trait pointillé discontinu).	74
2.6	Calcul des fonctions $Q_{n-\frac{1}{2}}^m(\cosh q_1)$ pour $m = 0,1,2$ and $n = 0$ (trait continu), $n = 1$ (trait discontinu), $n = 2$ (trait pointillé discontinu)	75
3.1	Raccord sur $\mathbf{D}_{(M,N;II)}^{\text{in}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_{q_1}$	88
4.1	Champ électrostatique appliqué à un tore diélectrique. Champ axial (a), champ planaire (b).	94
4.2	Valeurs exactes (traits interrompus) et valeurs approchées (traits pleins) de la coordonnée z en fonction de q_1, q_2 et n_{max}	97
4.3	Potentiel appliqué $\Phi^{\text{app}}(\mathbf{r}) = -E_0 z$ dans le plan xz	99
4.4	(a) Définition de l'angle θ . (b) Potentiels créés par un tore en or et par un dipôle à l'origine pour $r > R_{ext}$	101
4.5	Valeur exacte et valeur approché de la coordonnée x en fonction de q_1, q_2 et n_{max} . q_3 étant pris égal à 0.	104
4.6	Comparaison entre les potentiels créés par un tore en or et par un dipôle équivalent situé l'origine, calculés le long de la droite $q_3 = 65^\circ$ pour $r > R_{ext}$	107
5.1	Fonction diélectrique de l'Au: modèle de Drude et valeurs expérimentales.	114
5.2	Relations de dispersion de la géométrie du tore: branches des modes $N = 0$ (a) et $N = 1$ (b) pour $M = 0,1,2,3$, en fonction du rapport d/R_{in} . La fonction diélectrique de l'Au correspond au modèle de Drude et le milieu extérieur est l'air.	116

5.3	Relations de dispersion de la géométrie du tore : fréquences de modes $N = 0$ (a) et $N = 1$ (b) pour $M = 0,1,2,3$, en fonction du rapport d/R_{in} . La fonction diélectrique de l'Au correspondent aux données expérimentales [101] et le milieu extérieur est l'air.	117
5.4	Relations de dispersion dans la géométrie du tore : fréquences de modes $N = 0$ (a) et $N = 1$ (b) pour $M = 0,1,2,3$, en fonction du rapport d/R_{in} . La fonction diélectrique de l'Au correspondent aux données expérimentales et le verre constitue le milieu extérieur.	118
5.5	Répartition schématique du potentiel dans le plan xz pour le mode $M = 1$ $N = 0$	119
5.6	Répartition schématique du potentiel dans le plan xz pour le mode pair $M = 1$ $N = 1$	120
5.7	Répartition schématique du potentiel dans le plan xz pour le mode impair $M = 1$ $N = 1$	120
5.8	Distribution du champ électrique du mode pair $M = 1, N = 1$ ($\omega_{M=1,N=1;\Pi=1}^-$) et du mode impair $M = 0, N = 1$ ($\omega_{M=0,N=1;\Pi=1}^-$).	124
5.9	Distribution du champ électrique d'un mode pair $M = 0, N = 0$ et d'un mode impair $M = 0, N = 1$	126
6.1	Sections efficaces d'extinctions calculées par la formule analytique et par méthode de Green pour différents tores. La polarisation de l'onde plane incidente est axiale.	132
6.2	Distributions du champ électrique numérique à $\lambda = 498$ nm (a) et analytique à $\lambda = 496$ nm(b) à la résonance et pour un champ axial.	133
6.3	Sections efficaces d'extinctions calculées par la formule analytique et par méthode de Green pour différents tores. La polarisation de l'onde plane incidente est planaire	135
6.4	Distributions du champ électrique numérique ($\lambda = 800$ nm) (a et c) et analytique ($\lambda = 772$ nm) (b et d), à pour un tore de dimensions $d = 20$ nm et $R_{in} = 35$ nm, plongé dans l'air. Le champ appliqué est planaire.	136
6.5	Sur base des formules analytiques de l'approximation non retardée : sensibilité des résonances du tore en fonction de la constante diélectrique du milieu extérieur, et en fonction du facteur de forme d/R_{in}	138
6.6	Images au microscope électronique à balayage de tores fabriqués et caractérisés à l'Université de Graz(Autriche).	140

6.7	Dispositif permettant de mesurer l'extinction dû à l'échantillon.	141
6.8	Spectres d'extinction expérimentaux sur différents tores d'or. (a) tore t_1 : $d/R_{in} = 1.139$. (b) tore t_2 : $d/R_{in} = 0.835$. (c) tore t_3 : $d/R_{in} = 0.743$. (d) tore t_4 : $d/R_{in} = 0.65$	142
6.9	Sections efficaces d'extinction et fréquences de résonance théorique et ex- périmentale du mode $M = 1, N = 0$	143
6.10	Longueurs d'onde de résonance λ_r (µm) en fonction du rapport d/R_{in}	144
6.11	Spectres d'extinction expérimentaux (a) et analytiques (b) obtenus lors de l'inclinaison de l'échantillon par rapport au faisceau incident.	145
6.12	(a) Cas d'une particule isolée. Couplage du champ proche de deux parti- cules. (b) Polarisation parallèle. (c) Polarisation perpendiculaire	153
C.1	Coefficients de diffusion et d'extinction d'une nanosphère d'Or	183

Annexe A

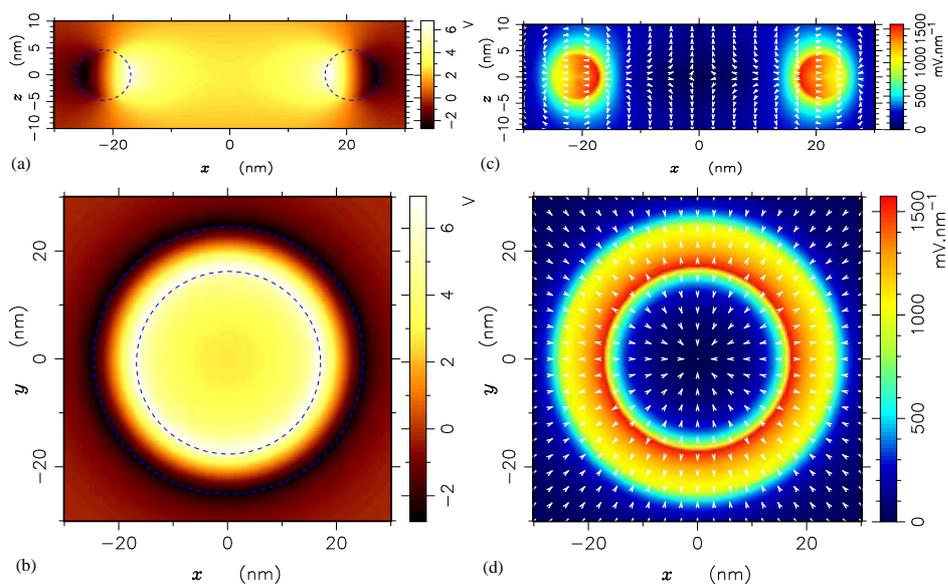
Table de conversion CGS-SI

	CGS	SI
Vitesse de la lumière	c	$(\mu_0 \varepsilon_0)^{-1/2}$
Champ électrique	\mathbf{E}	$\sqrt{4\pi \varepsilon_0} \mathbf{E}$
Potentiel électrique	ψ	$\sqrt{4\pi \varepsilon_0} \phi$
Déplacement électrique	\mathbf{D}	$\sqrt{\frac{4\pi}{\varepsilon_0}} \mathbf{D}$
Induction magnétique	\mathbf{B}	$\sqrt{\frac{4\pi}{\mu_0}} \mathbf{B}$
Champ magnétique	\mathbf{H}	$\sqrt{4\pi \mu_0} \mathbf{H}$
Constante diélectrique	ε	$\frac{\varepsilon}{\varepsilon_0}$
Perméabilité magnétique	μ	$\frac{\mu}{\mu_0}$
Dipôle électrique	\mathbf{p}	$\frac{1}{\sqrt{4\pi \varepsilon_0}} \mathbf{p}$
Densité de charge	ρ	$\frac{1}{\sqrt{4\pi \varepsilon_0}} \rho$
Densité de courant	\mathbf{J}	$\frac{1}{\sqrt{4\pi \varepsilon_0}} \mathbf{J}$
Polarisation	\mathbf{P}	$\frac{1}{\sqrt{4\pi \varepsilon_0}} \mathbf{P}$
Dipôle magnétique	\mathbf{m}	$\frac{\mu_0}{\sqrt{4\pi}} \mathbf{m}$

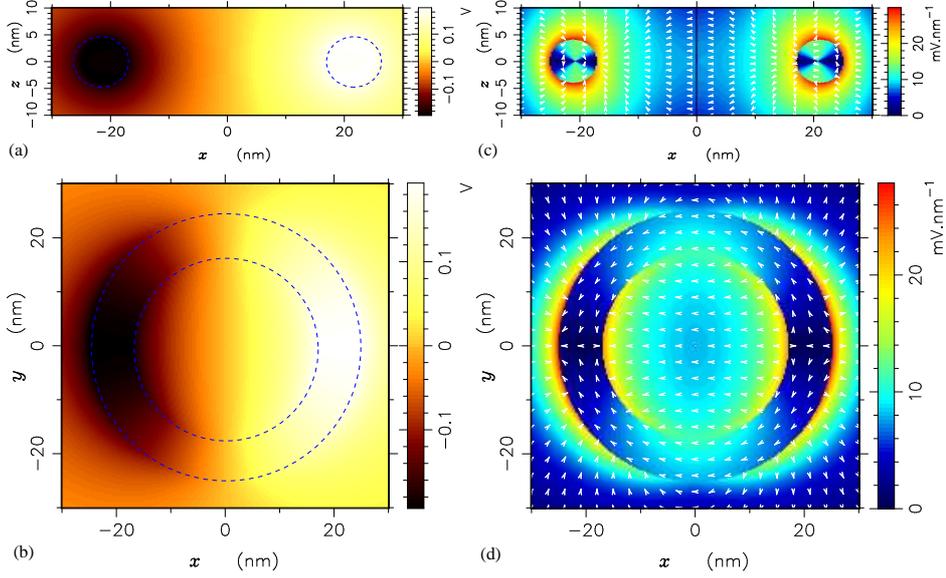
Annexe B

Distributions spatiales des modes propres d'ordre 1

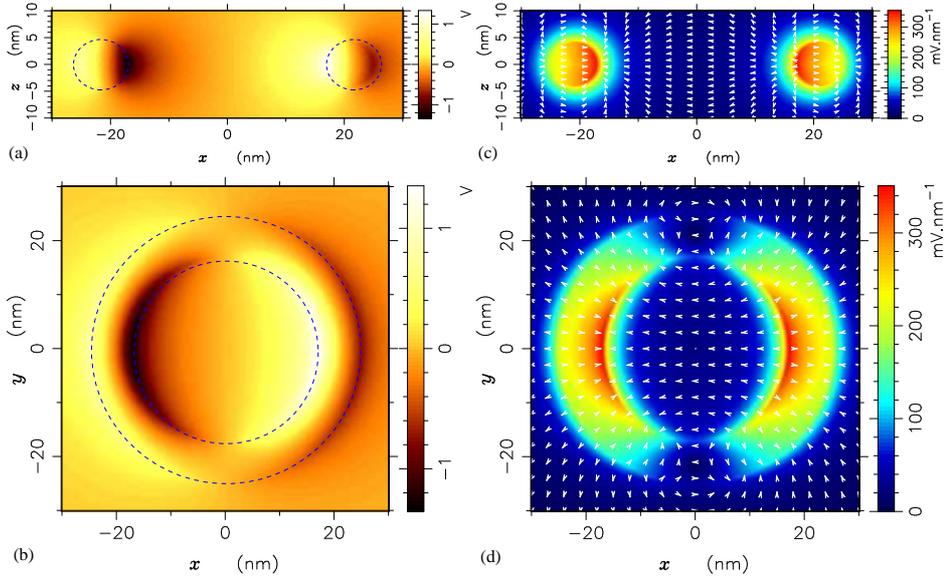
Modes pairs



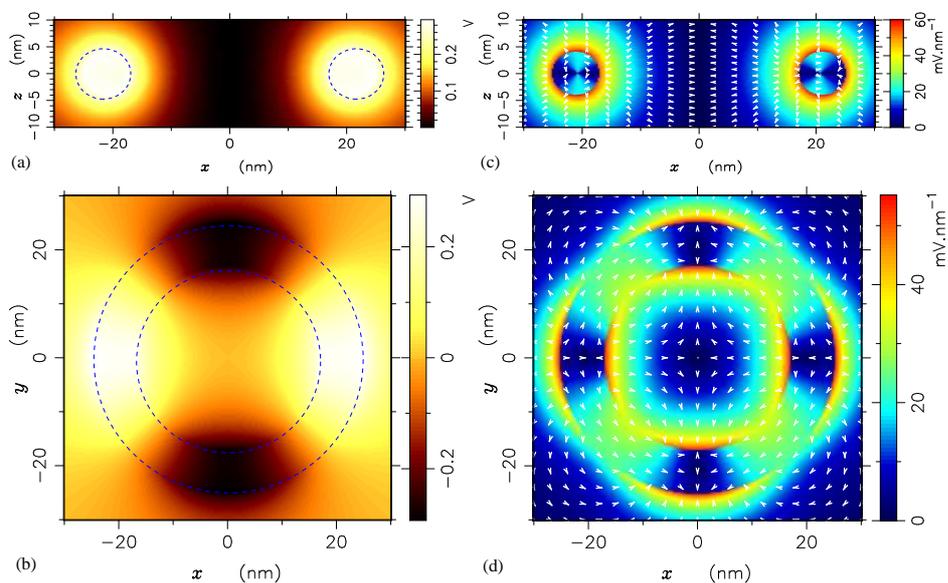
Distribution de $\phi_{0,0}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (b)), et de $|\mathbf{E}_{0,0}(\mathbf{r})|$ (Fig (c) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^+/c = 16.34 \mu\text{m}^{-1}$ du mode $M = 0$, $N = 0$.



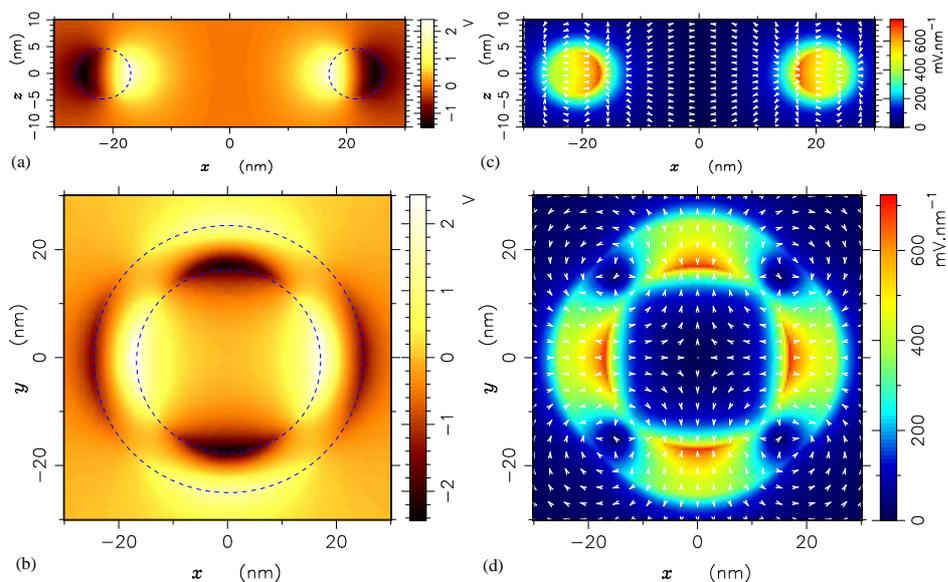
Distribution de $\phi_{1,0}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (b)), et de $|\mathbf{E}_{1,0}(\mathbf{r})|$ (Fig (c) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^-/c = 7.54 \mu\text{m}^{-1}$ du mode $M = 1$, $N = 0$.



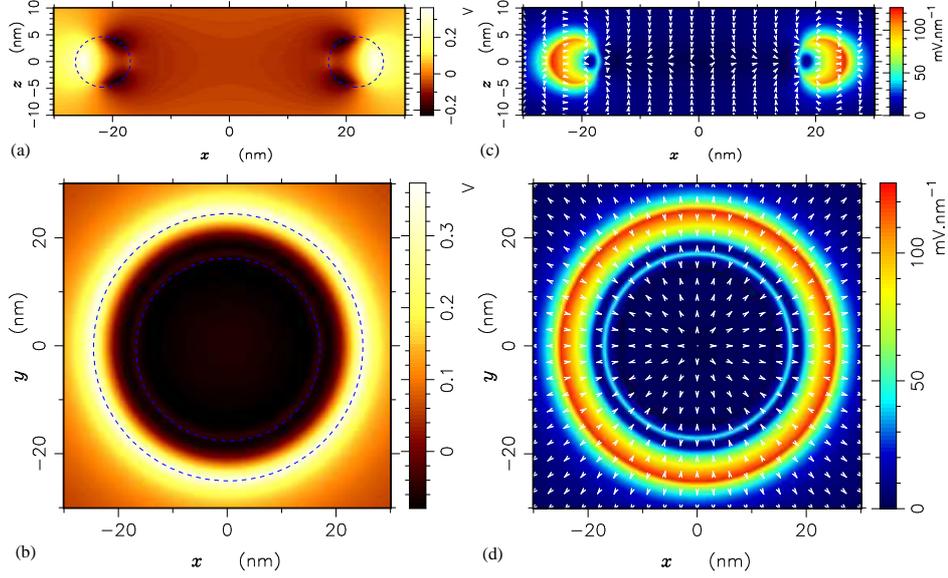
Distribution de $\phi_{1,0}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (b)), et de $|\mathbf{E}_{1,0}(\mathbf{r})|$ (Fig (c) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^+/c = 15.99 \mu\text{m}^{-1}$ du mode $M = 1$, $N = 0$.



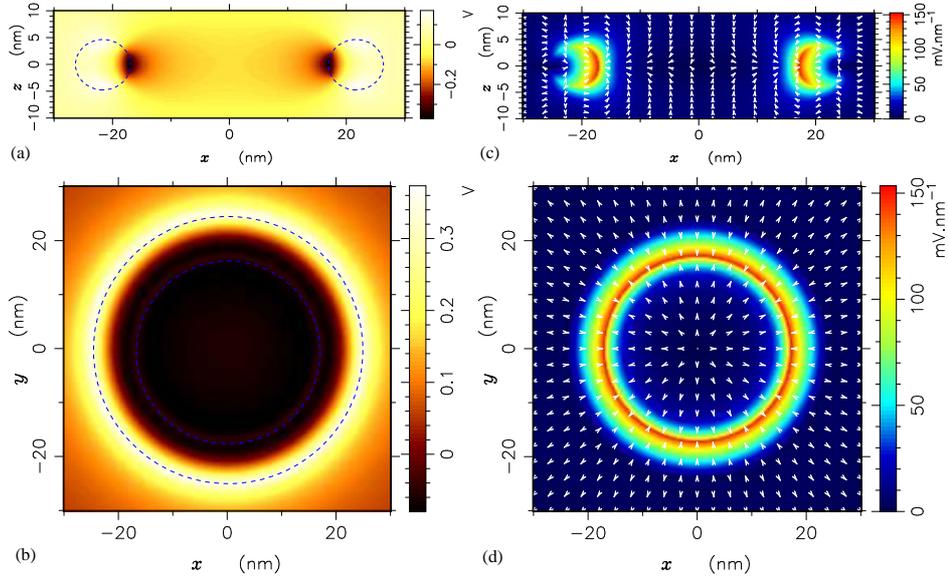
Distribution de $\phi_{2,0}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (b)), et de $|\mathbf{E}_{2,0}(\mathbf{r})|$ (Fig (c) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^-/c = 9.513 \mu\text{m}^{-1}$ du mode $M = 2, N = 0$.



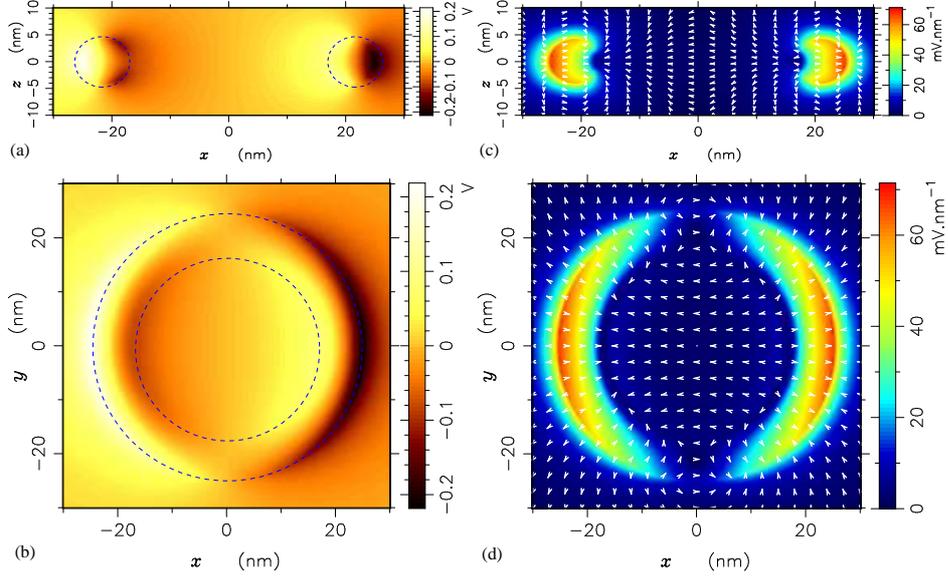
Distribution de $\phi_{2,0}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (b)), et de $|\mathbf{E}_{2,0}(\mathbf{r})|$ (Fig (c) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^+/c = 15.54 \mu\text{m}^{-1}$ du mode $M = 2, N = 0$.



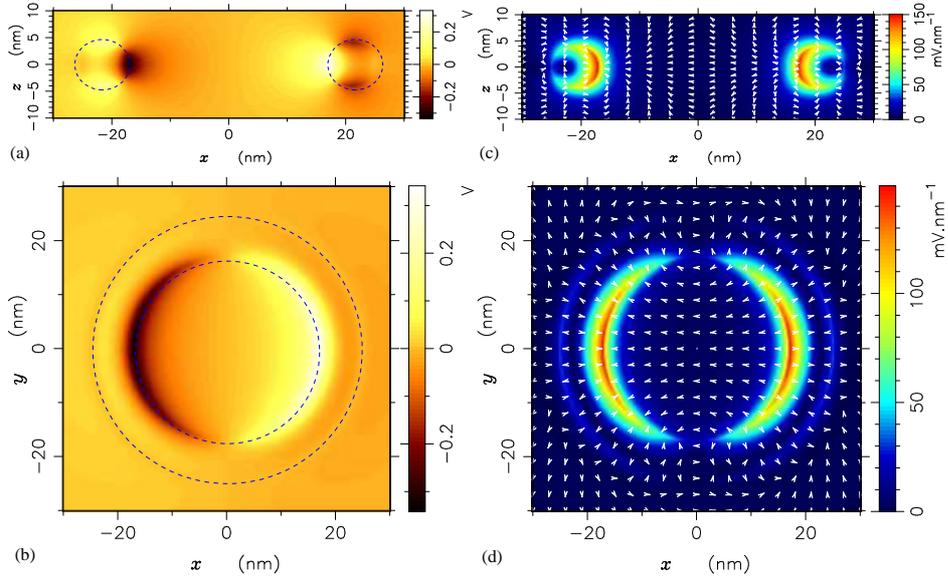
Distribution de $\phi_{0,1}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (b)), et de $|\mathbf{E}_{0,1}(\mathbf{r})|$ (Fig (c) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^-/c = 15.86 \mu\text{m}^{-1}$ du mode $M = 0$, $N = 1$.



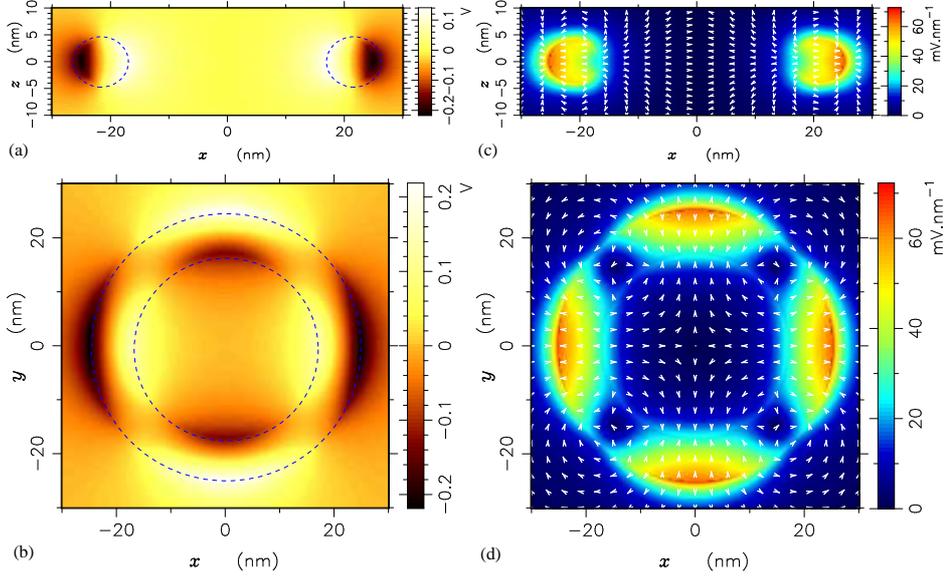
Distribution de $\phi_{0,1}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (b)), et de $|\mathbf{E}_{0,1}(\mathbf{r})|$ (Fig (c) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^+/c = 16.33 \mu\text{m}^{-1}$ du mode $M = 0$, $N = 1$. App



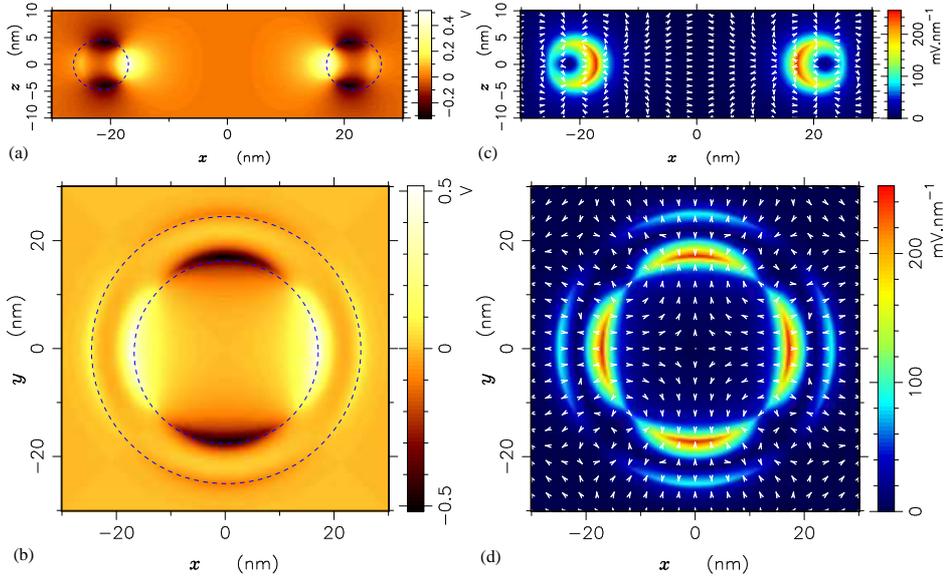
Distribution de $\phi_{1,1}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (b)), et de $|\mathbf{E}_{1,1}(\mathbf{r})|$ (Fig (c) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^-/c = 15.67 \mu\text{m}^{-1}$ du mode $M = 1, N = 1$.



Distribution de $\phi_{1,1}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (b)), et de $|\mathbf{E}_{1,1}(\mathbf{r})|$ (Fig (c) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^+/c = 16.216 \mu\text{m}^{-1}$ du mode $M = 1, N = 1$.

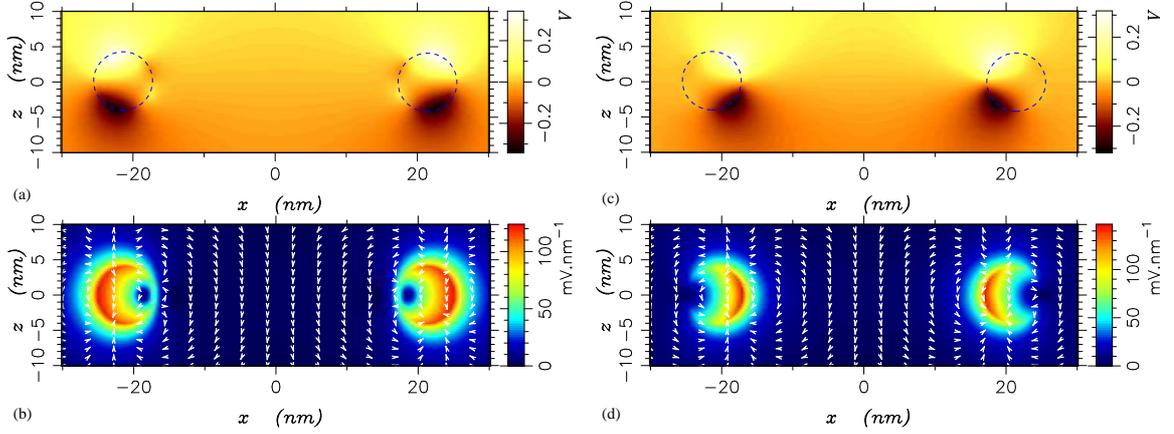


Distribution de $\phi_{2,1}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (b)), et de $|\mathbf{E}_{2,1}(\mathbf{r})|$ (Fig (c) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^-/c = 15.10 \mu\text{m}^{-1}$ du mode $M = 2$, $N = 1$.

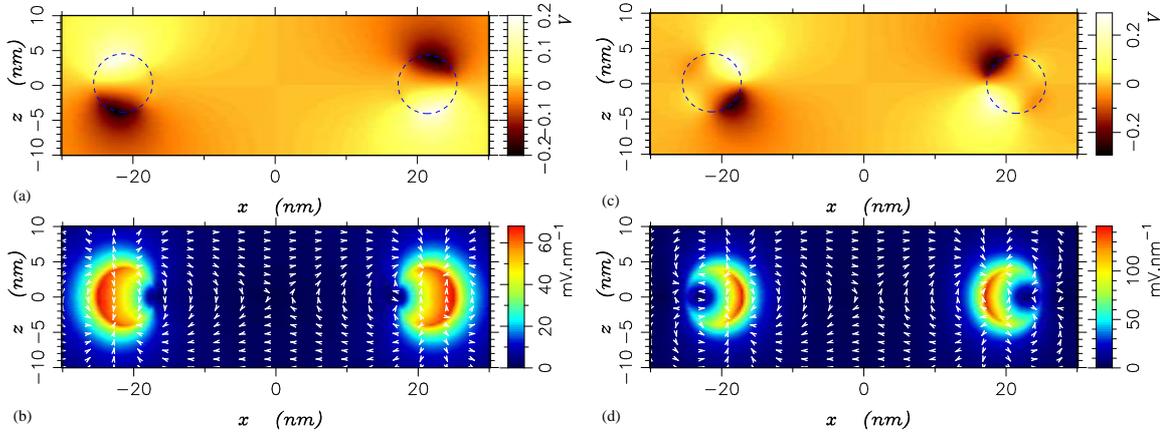


Distribution de $\phi_{2,1}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (b)), et de $|\mathbf{E}_{2,1}(\mathbf{r})|$ (Fig (c) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^+/c = 16.09 \mu\text{m}^{-1}$ du mode $M = 2$, $N = 1$.

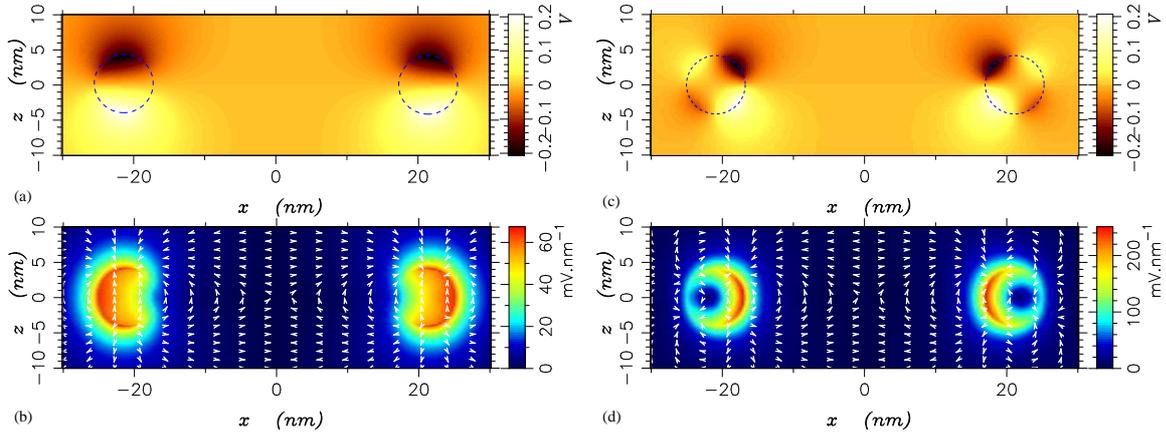
Modes impairs



Distribution de $\phi_{0,1}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (c)), et de $|\mathbf{E}_{0,1}(\mathbf{r})|$ (Fig (b) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^-/c = 15.86 \mu\text{m}^{-1}$ (Fig (a) et (b)) et $\omega^+/c = 16.33 \mu\text{m}^{-1}$ (Fig (c) et (d)) du mode $M = 0$, $N = 1$.



Distribution de $\phi_{1,1}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (c)), et de $|\mathbf{E}_{1,1}(\mathbf{r})|$ (Fig (b) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^-/c = 15.67 \mu\text{m}^{-1}$ (Fig (a) et (b)) et $\omega^+/c = 16.21 \mu\text{m}^{-1}$ (Fig (c) et (d)) du mode $M = 1$, $N = 1$.



Distribution de $\phi_{2,1}(\mathbf{r})$ (Fig (a) et (c)), et de $|\mathbf{E}_{2,1}(\mathbf{r})|$ (Fig (b) et (d)) pour un tore de paramètres $d = 8$ nm, $R_{in} = 17$ nm à la fréquence $\omega^-/c = 15.11 \mu\text{m}^{-1}$ (Fig (a) et (b)) et $\omega^+/c = 16.09 \mu\text{m}^{-1}$ (Fig (c) et (d)) du mode $M = 2$, $N = 1$.

Annexe C

Diffusion et extinction par la méthode du tenseur de Green

Cette annexe résume l'application de la méthode du tenseur de Green au calcul de la section efficace de diffusion et d'extinction d'une particule de forme et de fonction diélectrique arbitraire.

En supposant une dépendance temporelle harmonique dans les champs électromagnétiques et en considérant un milieu de référence homogène et non magnétique (ε_{ref} et $\mu_{ref} = 1$), l'équation d'onde vectorielle pour le champ électrique se déduisant des équations de Maxwell est:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon_{ref} \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) = 0 \quad (\text{C.1})$$

Le vecteur d'onde du milieu de référence est défini par :

$$k = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{ref}} \quad (\text{C.2})$$

Nous allons prendre comme milieu de référence un milieu non dissipatif ($\Im \varepsilon_{ref} = 0$). k sera donc réel dans la suite de cette annexe.

Le tenseur de Green associé à l'équation homogène (C.1) est défini mathématiquement par l'équation suivante [134]:

$$-\nabla \times \nabla \times \mathbf{G}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) + k^2 \mathbf{G}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) = \mathbf{I} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (\text{C.3})$$

Le tenseur $\mathbf{G}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega)$ est appelé propagateur car il donne la réponse du système en \mathbf{r} à une excitation ponctuelle en \mathbf{r}' .

L'introduction d'un ou plusieurs objets de fonctions diélectriques différentes du milieu de référence correspond à une perturbation par rapport à dernier. Dans ce cas, l'équation

d'onde associée à la présence de ces objets, considérés comme des centres diffuseurs, peut se mettre sous la forme :

$$-\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) + k^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (\text{C.4})$$

où $V(\mathbf{r}, \omega)$ définit la perturbation par la distribution des centres diffuseurs de fonctions diélectriques $\varepsilon(\mathbf{r}, \omega)$:

$$V(\mathbf{r}, \omega) = \frac{\omega^2}{c^2} (\mathbf{I} \varepsilon_{ref}(\mathbf{r}, \omega) - \mathbf{I} \varepsilon(\mathbf{r}, \omega)) \quad (\text{C.5})$$

où \mathbf{I} est le tenseur unité.

L'équation de Lippmann-Schwinger implicite correspond à l'addition d'une solution de l'équation homogène (Eq. C.1) et d'une solution particulière de l'équation (C.4) que nous appellerons champ diffusé $\mathbf{E}_s(\mathbf{r})$:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) + \mathbf{E}_s(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) + \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{r}' G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) V(\mathbf{r}', \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}') \quad (\text{C.6})$$

L'intégrale ne porte que sur le volume (\mathcal{V}) où la perturbation $V(\mathbf{r}, \omega)$ est non nulle.

Il convient maintenant d'explicitier le tenseur de Green d'un milieu homogène. Son expression est bien connue [134] :

$$G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}''; \omega) = \left[\mathbf{I} + \frac{1}{k^2} \nabla \cdot \nabla \right] g(\mathbf{r}, \mathbf{r}''; \omega) \quad (\text{C.7})$$

où $g(\mathbf{r}, \mathbf{r}''; \omega)$ est la fonction de Green associée à l'équation de Helmholtz scalaire.

$$g(\mathbf{r}, \mathbf{r}''; \omega) = \frac{e^{ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}''|}}{4\pi|\mathbf{r}-\mathbf{r}''|} \quad (\text{C.8})$$

Si on pose $\mathbf{R} = \mathbf{r} - \mathbf{r}'$, $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}''; \omega)$ peut s'écrire sous la forme analytique suivante [48] :

$$G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) = \frac{e^{ikR}}{4\pi R} \left[-\mathbf{T}_1(\mathbf{R}) - \frac{i}{k} \mathbf{T}_2(\mathbf{R}) + \frac{1}{k^2} \mathbf{T}_3(\mathbf{R}) \right] \quad (\text{C.9})$$

Les tenseurs \mathbf{T}_1 , \mathbf{T}_2 et \mathbf{T}_3 expriment les dépendances en $|\mathbf{R}| = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ du tenseur $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}''; \omega)$.

$$\mathbf{T}_1(\mathbf{R}) = \frac{\mathbf{R} \otimes \mathbf{R} - \mathbf{I} R^2}{R^3} \quad (\text{C.10})$$

$$\mathbf{T}_2(\mathbf{R}) = \frac{\mathbf{R} \otimes \mathbf{R} - \mathbf{I} R^2}{R^4} \quad (\text{C.11})$$

$$\mathbf{T}_3(\mathbf{R}) = \frac{\mathbf{R} \otimes \mathbf{R} - \mathbf{I} R^2}{R^5} \quad (\text{C.12})$$

T_1 décrit le comportement du champ électrique en champ lointain (dépendance en $1/R$). T_3 , avec une dépendance en $1/R^3$, décrit les effets du champ proche, alors que T_2 décrit le régime transitoire avec une dépendance en $1/R^2$.

La méthode du tenseur de Green permet de calculer les valeurs du champ électrique en tout point de l'espace pour un centre diffuseur soumis à un champ harmonique incident. Il devient alors possible d'étudier la diffusion et l'extinction par des objets de géométrie quelconque. On rappelle que la puissance totale diffusée par unité de temps hors du volume de l'expérience s'écrit (cf chapitre 1) :

$$W_s = \frac{r^2}{2} \Re \int_S d\Omega_n (\mathbf{E}_s(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}_s^*(\mathbf{r})) \cdot \mathbf{n} \quad (\text{C.13})$$

où \mathbf{n} est un vecteur unité normal à l'élément d'aire $r^2 d\Omega_n$ ($d\Omega_n$ représente l'élément d'angle solide dans la direction \mathbf{n}) et que S est la surface d'une sphère de rayon infini et centrée sur la particule. La puissance diffusée à l'infini dans la direction \mathbf{n} et rapportée à l'unité de surface est donnée par :

$$\frac{dW_s}{d\Omega_n} = \lim_{r \rightarrow \infty} \frac{1}{2} \Re (\mathbf{E}_s(\mathbf{r}) \times \mathbf{H}_s^*(\mathbf{r})) \cdot \mathbf{n} \quad (\text{C.14})$$

Le second terme de l'équation de Lippman-Schwinger (C.6) fournit la valeur du champ diffusé à grande distance \mathbf{r} de la perturbation :

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{r}) = \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{r}' G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) V(\mathbf{r}', \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}') \quad (\text{C.15})$$

L'application pratique requiert la détermination de la forme asymptotique du tenseur de Green lorsque \mathbf{r} tend vers l'infini, ce qui ne présente pas de difficulté. Si \mathbf{r} est beaucoup plus grand que \mathbf{r}' , nous pouvons approximer $|\mathbf{R}|$ par :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} |\mathbf{R}| = r - \mathbf{n} \cdot \mathbf{r}' \quad (\text{C.16})$$

où $\mathbf{r} = r \mathbf{n}$. Dans l'expression de C.9, si on néglige les termes relatifs au champ proche, nous aboutissons à :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) = -\frac{e^{ikr}}{4\pi r} e^{-ik \mathbf{n} \cdot \mathbf{r}'} \{I - \mathbf{n} \otimes \mathbf{n}\} \quad (\text{C.17})$$

Loin du centre diffuseur, la dépendance de $\mathbf{E}_s(\mathbf{r})$ en fonction de \mathbf{r} s'identifie à celle d'une onde sphérique :

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{r}) = \frac{e^{ikr}}{r} \mathbf{e}_s(\mathbf{n}) \quad (\text{C.18})$$

avec

$$\mathbf{e}_s(\mathbf{n}) = \frac{1}{4\pi} \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{r}' e^{-ik \mathbf{n} \cdot \mathbf{r}'} \{ \mathbf{n} \times \mathbf{n} - \mathbf{I} \} V(\mathbf{r}', \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}') \quad (\text{C.19})$$

L'expression du champ magnétique est extraite de $\nabla \times \mathbf{E}_s(\mathbf{r}) / (i\omega\mu_0)$ en coordonnées sphériques et en éliminant les termes de champ proche :

$$\mathbf{H}_s(\mathbf{r}) = -\frac{1}{\omega\mu_0} k \mathbf{n} \times \mathbf{E}_s(\mathbf{r}) \quad (\text{C.20})$$

On vérifie ici le fait que les vecteurs $\mathbf{E}_s(\mathbf{r})$, $\mathbf{H}_s(\mathbf{r})$ et \mathbf{n} sont orthogonaux dans la zone éloignée. La puissance diffusée à l'infini dans la direction \mathbf{n} par unité d'aire est donc proportionnel à l'intensité du champ électrique et s'exprime sous la forme suivante :

$$\frac{dW_s}{d\Omega_n} = \frac{1}{r^2} \frac{k}{2\omega\mu_0} |\mathbf{e}_s(\mathbf{n})|^2 \quad (\text{C.21})$$

Le champ incident est ici une onde plane $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0 e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}$. Le flux incident par unité de surface qui lui est associé a pour expression :

$$\mathbf{S}_0 \cdot \mathbf{n}_0 = \frac{k}{2\omega\mu_0} |\mathbf{E}_0|^2 \quad \text{avec } \mathbf{n}_0 = \frac{\mathbf{k}}{k} \quad (\text{C.22})$$

La division de (C.21) par (C.22) définit une quantité appelée section efficace différentielle de diffusion :

$$\frac{dC_s}{d\Omega_n} = \frac{|\mathbf{e}_s(\mathbf{n})|^2}{|\mathbf{E}_0|^2} \quad (\text{C.23})$$

Physiquement, $dC_s/d\Omega_n$ spécifie la distribution angulaire du champ diffusé, c'est-à-dire la quantité de lumière diffusée (et normalisée par rapport à la lumière incidente) à l'intérieur d'une unité d'angle solide dans une direction donnée. Pour obtenir la valeur de la section efficace de diffusion, il suffit alors d'intégrer sur toutes les directions :

$$C_s = \int_{4\pi} \frac{dC_s}{d\Omega_n} d\Omega_n = \int_{4\pi} \frac{|\mathbf{e}_s(\mathbf{n})|^2}{|\mathbf{E}_0|^2} d\Omega_n \quad (\text{C.24})$$

L'évaluation du champ électrique diffusé permet également de calculer la section efficace d'extinction. :

$$C_{ext} = \int \frac{1}{2} \Re(\mathbf{E}_0 \times \mathbf{H}_s^* + \mathbf{E}_s \times \mathbf{H}_0^*) \cdot \mathbf{n}_0 r^2 \sin \theta d\theta d\phi \quad (\text{C.25})$$

Le champ incident étant une onde plane et connaissant les expressions des champs diffusés en champ lointain, on montre que C_{ext} se réécrit sous la forme suivante (théorème optique) :

$$C_{ext} = \frac{4\pi}{k} \Im \left(\frac{\mathbf{E}_0 \cdot \mathbf{e}_s(\mathbf{n}_0)}{|\mathbf{E}_0|^2} \right) \quad (\text{C.26})$$

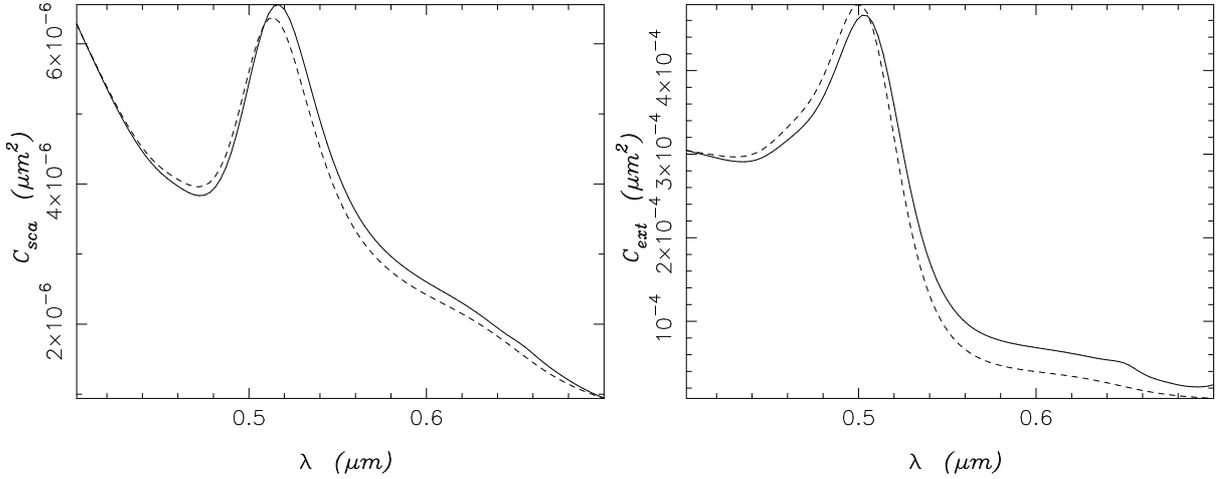


FIG. C.1 – Coefficient de diffusion (a) et coefficient d’extinction (b) d’une sphère d’Au de 30 nm de diamètre plongée dans un milieu homogène $\varepsilon_{ref} = 1$. Les courbes en trait plein correspondent aux valeurs de C_s et C_{ext} calculées à partir de la méthode de Green et les courbes en traits discontinus correspondent à la forme analytique des coefficients pour une nanosphère (eq. 1.133). La sphère a été discrétisée par 1791 cubes de volume $2 \times 2 \times 2 \text{ nm}^3$.

Le calcul de la section efficace d’extinction ne requiert que l’évaluation du champ électrique diffusé dans la direction de propagation de l’onde incidence (“forward scattering”) à l’aide de la formule (C.19).

Afin d’apprécier la précision de l’application numérique de la théorie de la perturbation, nous avons comparés les valeurs de la section efficace de diffusion obtenues à l’aide de la formule exacte de Mie (eq. 1.133) avec celles issues de l’équation de Lippman-Schwinger et de la méthode numérique expliquée précédemment. Les résultats résumés dans les figures (C.1(a) et (b)) ont été obtenue pour une sphère d’or de 30 nm de diamètre plongé dans l’air. Les courbes en trait plein correspondent aux valeurs des sections efficaces de diffusion et d’extinction calculées à partir de la méthode de Green. Les courbes en traits discontinus correspondent aux valeurs obtenues par la forme analytique des sections efficaces pour une nanosphère (eq. 1.133 et eq. 1.134). Nous pouvons voir sur les courbes la présence d’une résonance vers $k = 12,2 \mu\text{m}^{-1}$ soit $\lambda = 0.515 \text{ nm}$ en unité de longueur d’onde . Cela correspond bien à la fréquence de résonance plasmon d’une sphère d’or $\varepsilon(\omega) = -2\varepsilon_{ref}$ si on prend en compte la partie imaginaire de la fonction diélectrique.

Ce calcul effectué sur une structure simple nous permet de vérifier que la méthode du tenseur de Green est bien adaptée au calcul des sections efficaces [135]. Dans le chapitre

6, la méthode du tenseur de Green est appliqué afin de trouver les fréquences des modes de plasmon d'un tore d'or lorsque celui-ci est soumis à une onde incidente.

Annexe D

Sections efficaces de diffusion et d'extinction de nanotores métalliques

D.1 Tore métallique dans un champ uniforme axial

Section efficace de diffusion :

$$C_{sca} = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha_z|^2 = \frac{2}{3} k^4 v^2 \left| \frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \eta_z W_1}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0} \right|^2 \quad (D.1)$$

Section efficace d'extinction :

$$C_{ext} = C_{sca} + k \Im\{\alpha_z\} = C_{sca} + 4\pi k v \Im\left(\frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \eta_z W_1}{C_1^0 C_2^0 - G_1^0 G_2^0}\right) \quad (D.2)$$

avec

$$G_n^m = \left[\varepsilon_1 Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) \frac{dP_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1)}{dq_1} \right]_{q_1=q_1^0} - \varepsilon_2(\omega) P_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) \left[\frac{dQ_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1)}{dq_1} \right]_{q_1=q_1^0} \quad (D.3)$$

$$C_n^m = \left[(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \sinh q_1^0 P_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) Q_{n-\frac{1}{2}}^m(q_1^0) - 2G_n^m \cosh q_1^0 \right] \quad (D.4)$$

$$W_1 = -\frac{4\sqrt{2}}{\pi} \left[-2 \frac{dQ_{3/2}^0}{dq_1} \right]_{q_1^0} \{G_2(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + C_2\} + \left[\frac{dQ_{1/2}^0}{dq_1} \right]_{q_1^0} \{C_2(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + G_2\} \quad (D.5)$$

η_z est une fonction de q_1^0 , sans dimension et dont la valeur est déduite numériquement lors du raccord (4.29). k est le vecteur d'onde et v représente le volume du tore :

$$v = 2\pi^2 \left(\frac{d}{2}\right)^2 \left(R_{in} + \frac{d}{2}\right) \quad (D.6)$$

La fonction diélectrique du tore est notée $\varepsilon_2(\omega)$ et ε_1 désigne la fonction diélectrique du milieu extérieur.

D.2 Tore métallique dans un champ uniforme planaire

Section efficace de diffusion :

$$C_{sca} = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha_x|^2 = \frac{2}{3} k^4 v^2 \left| \frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \eta_x W_0}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1} \right|^2 \quad (D.7)$$

Section efficace d'extinction :

$$C_{ext} = C_{sca} + k \Im\{\alpha_x\} = C_{sca} + 4\pi k v \Im\left(\frac{(\varepsilon_2(\omega) - \varepsilon_1) \eta_x W_0}{C_0^1 C_1^1 - 2G_0^1 G_1^1}\right) \quad (D.8)$$

avec

$$W_0 = \frac{2\sqrt{2}}{\pi} \left[\frac{dQ_{-1/2}^1}{dq_1} \right]_{q_1^0} \{C_1^1(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + 2G_1^1\} + \frac{dQ_{1/2}^1}{dq_1} \left[\{2G_1^1(2 \cosh q_1^0 - \sinh q_1^0) + 2C_1^1\} \right] \quad (D.9)$$

η_x est une fonction de q_1^0 , sans dimension et dont la valeur est déduite lors du raccord (4.55).