HAL
open science

Localisations et exaltations de la lumière dans des structures métalliques sub-longueur d'onde

Jérôme Le Perchec

To cite this version:

Jérôme Le Perchec. Localisations et exaltations de la lumière dans des structures métalliques sub-longueur d'onde. Physique [physics]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2007. Français. NNT : . tel-00149401

HAL Id: tel-00149401

https://theses.hal.science/tel-00149401v1

Submitted on 25 May 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.

Localisations et Exaltations de la Lumière dans des Structures Métalliques Sub-Longueur d'Onde

THÈSE
présentée par

Jérôme LE PERCHEC

Pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université Joseph Fourier - Grenoble
Spécialité : électromagnétisme

Date de la soutenance : 22 Janvier 2007

Composition du Jury :

Armand WIRGIN	(Rapporteur)
Philippe LALANNE	(Rapporteur)
Stéphane COLLIN	(Examinateur)
Thierry DOMBRE	(Président)
Tomas LOPEZ-RIOS	(Directeur de Thèse)
Pascal QUEMERAIS	(Co-Directeur de Thèse)

Cette thèse, qui résume un peu plus de trois années de travail, a été réalisée au Laboratoire d'Etudes des Propriétés Electroniques des Solides, dirigé par Didier Mayou, au **Centre National de la Recherche Scientifique** de Grenoble.

Le 1er Janvier 2007, plusieurs laboratoires du CNRS de Grenoble, dont le LEPES, ont été refondés en trois départements au sein du nouvel Institut Néel.

J'exprime ici ma plus profonde reconnaissance envers ceux qui m'ont donné cette chance de travailler sur un si beau sujet, envers ceux qui m'ont tant apporté durant la thèse, et avec qui je me suis, au fond, si bien entendu :

Pascal Quémerais, Aude Barbara, et Tomas López-Ríos.

Grâce à vous, je suis devenu... MERCI !

Table des matières

1 Introduction Générale **1**
1.1 Contexte scientifique 1
1.2 Présentation du sujet de thèse 6

I Théorie et Systèmes de Base **9**

2 Fondamentaux du Problème Electromagnétique **11**
2.1 Quelques rappels sur les plasmons de surface 11
2.2 Profil des structures étudiées et méthode modale 13
2.3 Développement modal du champ autour d'une fente métallique 15
2.3.1 Equations électromagnétiques 16
2.3.2 Modes liés : l'équation aux valeurs propres 17
2.3.3 Modes diffusés : le problème du continuum 19
2.3.4 Résumé du développement modal 20
2.3.5 Modes propres dans le cas du métal parfait 21
2.3.6 Extension au métal réel 22
2.4 La cavité sub-longueur d'onde 22
2.4.1 Notion d'indice effectif de cavité 23
2.4.2 Couplage des plasmons de parois : naissance d'un guide d'onde . 24
2.4.3 Champs et distribution de charge associés au mode guidé 27

3 Cavité Unique et Réseau Périodique **31**
3.1 Introduction 31
3.2 Méthode modale restreinte : approximations des conditions aux limites 32
3.2.1 Raccord par l'impédance de surface 33
3.2.2 Hypothèse de parois verticales parfaitement conductrices 34
3.2.3 Bilan des conditions de raccords 36
3.3 Calcul des champs dans un système de gravures sub-longueur d'onde . 36
3.3.1 Expressions générales des champs 36
3.3.2 Projections et résolution du problème 38
3.3.3 Passage d'une fente isolée au réseau périodique 38
3.3.4 Formules analytiques essentielles 40
3.4 Simulations numériques 42
3.4.1 Cavité sub-longueur d'onde : résonateur de Fabry-Perot 42

3.4.2 Réseau périodique : résonance du guide d'onde et des plasmons de surface . . . 49
3.5 Excitation efficace par onde évanescente . . . 53

II Méthode Modale Restreinte (suite) 59

4 Contrôle de la localisation de la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde dans un système à deux fentes 61
4.1 Introduction . . . 61
4.2 Mise en équations et simulations . . . 62
4.2.1 Expression des champs, raccords et résolution . . . 63
4.2.2 Modes propres et conditions de résonance . . . 64
4.2.3 Simulations numériques . . . 66
4.2.4 Levée de dégénérescence de la résonance Fabry-Perot . . . 70
4.3 Etude du couplage en champ proche . . . 72
4.3.1 Analyse des caractéristiques des modes . . . 72
4.3.2 Analogie aux dipôles oscillants . . . 74
4.3.3 Rayonnement dipolaire et/ou quadrupolaire . . . 76
4.4 Extension de l'étude analytique . . . 78
4.4.1 Caractérisation des largeurs de résonance . . . 78
4.4.2 Caractérisation du décalage fréquentiel Δ . . . 80
4.4.3 Sub-radiance/Super-radiance . . . 81
4.5 Contrôle de la localisation de la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde 83
4.5.1 Obtention de résonances symétrique et antisymétrique pures . . 84
4.5.2 Allumage sélectif d'une cavité : commutateur optique . . . 86
4.5.3 Perspectives . . . 89
4.6 Conclusion . . . 90

5 Effets de localisation dans des structures plus complexes 93
5.1 Equations modales pour une collection quelconque de cavités sub-longueur d'onde . . . 94
5.2 Le triplet de cavités équidistantes . . . 97
5.2.1 Modes propres du système . . . 97
5.2.2 Simulations pour le couplage en champ proche . . . 100
5.2.3 Evolution des modes propres en fonction de la distance . . . 102
5.3 Généralisation à N cavités couplées . . . 104
5.4 Contrôle (limité) de la localisation de la lumière dans un quintuplet de cavités . . . 105
5.5 Considérations de symétrie . . . 106
5.6 Etude de réseaux "quasi-périodiques" . . . 108
5.6.1 Deux façons de rompre la périodicité . . . 108
5.6.2 Extinction sélective dans un réseau à deux cavités par période . 112
5.7 Preuve expérimentale des nouvelles localisations de la lumière dans des réseaux commensurables . . . 114

5.7.1 Fabrication et description des échantillons 114
5.7.2 Mesures expérimentales - Comparaison à la théorie 116
5.8 Conclusion 120

III Méthode Modale Exacte 123

6 Théorie Modale Exacte - Formalisme 125
6.1 Introduction 125
6.2 Présentation générale de la théorie 127
6.2.1 Schéma et principe de la méthode 127
6.2.2 Equations de Maxwell 129
6.2.3 Champs dans les régions homogènes I et III : développement de Rayleigh 129
6.2.4 Champ dans le réseau périodique : développement modal 130
6.2.5 Raccords aux interfaces, projections et résolution 132
6.3 Le problème aux valeurs propres 132
6.3.1 Matrice de transfert du réseau 132
6.3.2 Equation aux valeurs propres 134
6.3.3 Cas particulier de l'incidence normale 138
6.4 Fonctions propres du réseau 139
6.4.1 Formulation générale 139
6.4.2 Réseau à une cavité 140
6.4.3 Réseau à deux cavités 140
6.4.4 Considérations de symétrie 141
6.5 Espace vectoriel des modes propres et problème adjoint 141
6.5.1 Définition du Projecteur 142
6.5.2 Cas où ε est complexe : le problème adjoint 143
6.5.3 Fonctions propres adjointes 145
6.6 Equation matricielle modale et résolution 145
6.6.1 Expressions générales 146
6.6.2 Connexion des champs des 3 régions 146
6.6.3 Projection des équations et résolution 147
6.6.4 Discussion sur la méthode de projection 148

7 Exploitation Numérique de la Méthode Modale Exacte 153
7.1 Résolution numérique de l'équation aux valeurs propres 153
7.1.1 Principe 154
7.1.2 Descriptif de la procédure informatique 155
7.1.3 Courbes de dispersion des modes propres (carte modale) 157
7.1.4 Le problème des racines "cachées" 161
7.2 Application au réseau à 1 cavité/période 164
7.2.1 Courbe représentative de l'EVP 164
7.2.2 Caractérisation des valeurs propres 165
7.2.3 Interprétation physique des fonctions propres 167

7.2.4 Spectre de réflectivité et cartographies du champ 171
7.3 Application au réseau à 2 cavités/période 173
7.3.1 Courbe représentative de l'EVP 173
7.3.2 Caractérisation des valeurs propres 175
7.3.3 Interprétation physique des fonctions propres 176
7.3.4 Spectre de réflectivité et cartographies du champ 179
7.3.5 Cas du réseau en transmission 181
7.4 Conclusion des chapitres 6 et 7 182

8 Absorption Optique Anormale et Exaltations de Surface 183
8.1 Introduction 183
8.1.1 Le phénomène du Signal Raman Exalté en Surface 183
8.1.2 Les films métalliques déposés à froid 185
8.1.3 Le réseau fortement sub-λ comme modèle d'approche 187
8.2 Résultats obtenus par la méthode modale exacte 188
8.2.1 Comparaison de l'AOA observée sur des films d'argent avec l'absorption calculée d'un réseau 188
8.2.2 Le couplage des plasmons de parois 192
8.3 Discussion générale 199
8.3.1 Effet du couple (w, h) sur la résonance 199
8.3.2 Effet de la période sur l'amplitude des exaltations 201
8.3.3 Résonateur nanométrique : exaltations extrêmes 204
8.4 En Guise de conclusion 210

9 Conclusion Générale 213

A Permittivité d'un Métal et Tables 217

B Démonstrations et Compléments pour la Partie I 220
B.1 Equation aux valeurs propres d'une fente isolée 220
B.2 Ecart au cas de parois parfaitement réflectrices 221
B.3 Commentaire annexe sur les impédances 222
B.4 Détails sur la technique de projection 223
B.5 Convolution par un peigne de Dirac 224
B.6 Comportements des champs électromagnétiques à la surface 224
B.6.1 Champ E_y 225
B.6.2 Champ E_x 226
B.6.3 Champ H_z 227
B.7 Une analogie aux miroirs plans 228

C Compléments de la Partie II 229
C.1 Calcul exact de l'intégrale de diffusion en métal parfait 229
C.2 Analogie à l'interaction dipôle-dipôle 233
C.3 Triplet de cavités identiques : modes propres 235

D Compléments de la Partie III **237**
D.1 Séparation des variables et équations de Maxwell 237
D.2 Coefficients de la matrice de tranfert T du réseau 237
D.2.1 Réseau d-périodique à 1 cavité 237
D.2.2 Réseau D-périodique à 2 cavités 238
D.3 Éléments des matrices χ et Υ 239
D.3.1 Réseau d-périodique à 1 cavité 239
D.3.2 Réseau D-périodique à 2 cavités 239
D.3.3 Calcul des éléments de Ω 240
D.4 Considérations annexes sur les valeurs propres Λ^2 241
D.5 Comparaison de simulations obtenues *via* différentes méthodes numériques 242
D.6 Restriction unimodale à partir de la méthode exacte 244

Chapitre 1

Introduction Générale

"I believe that there is some peculiar action of deep pits and crevasses upon light-waves which it is of great importance to investigate theoretically.[...] Cavities or pits gave rise to optical phenomena of unique type." R.W.Wood (1919)

1.1 Contexte scientifique

La lumière est une onde électromagnétique décrite par les équations de Maxwell. Celle que l'on voit à l'oeil nu, notamment, est caractérisée par de très rapides oscillations (quelques cent mille milliards d'oscillations par seconde). Dans le vide, une onde lumineuse monochromatique se propage avec une vitesse absolue (célérité) notée c, et est spécifiée par sa longueur d'onde, généralement notée λ.

La branche de l'optique qui considère les problèmes de propagation de la lumière en termes de rayons lumineux plus ou moins courbés (*i.e.* qui en ignore l'aspect ondulatoire), s'appelle l'optique *géométrique*. Cette théorie, bien qu'approximative, se fonde sur de puissants théorèmes, comme le principe de Fermat, selon lequel un rayon lumineux suit toujours le chemin dont le temps de parcours est le plus petit.

A partir du moment où l'on veut étudier l'interaction de la lumière avec des objets dont la taille est de l'ordre de la longueur d'onde, ce qui sera notre cas, il faut revenir à la théorie *électromagnétique* (Maxwell). Cette dernière peut expliquer tous les phénomènes liés à la propagation des ondes lumineuses, en dehors des processus d'émission ou d'absorption de la lumière par la matière, ce dont rend compte la physique quantique. La nature de la lumière n'est, en effet, pas complètement déterminée puisque certains phénomènes optiques s'expliquent soit par un comportement ondulatoire, soit par un comportement corpusculaire (en termes de photons) ; on parle alors de dualité onde-corpuscule. Cela étant dit, nous nous placerons résolument dans le cadre de la seule théorie électromagnétique, et traiterons notre problème d'un point de vue purement ondulatoire.

Le théorème d'extinction d'Ewald-Oseen[1] nous dit qu'un matériau homogène réagit *entièrement* à un champ lumineux auquel il est soumis, en annulant à l'intérieur de

[1]Voir *Principles of Optics*, de Max Born et Emil Wolf (Pergamon Press, 6eme edn, 1991).

lui-même l'onde incidente pour la substituer à une autre[2], se propageant à une vitesse moins grande c/n, où n est l'indice optique du milieu alors défini. L'existence de cet indice explique les phénomènes de réfraction de la lumière au passage d'une interface matérielle.

Les propriétés optiques d'un milieu sont foncièrement liées au nombre et aux propriétés des particules diffusantes qui le constitue, comme l'illustre la formule de Lorentz-Lorenz[3]. Le comportement de la matière, sous l'influence d'un champ, peut être décrit macroscopiquement par des *relations constitutives* qui vont compléter les équations de Maxwell. Ces relations font intervenir, pour un matériau isotropique, une permittivité relative ε (liée à la polarisabilité électrique des molécules) et une perméabilité relative μ (propriétés de polarisabilité magnétique), ce qui définit l'indice optique $n = \sqrt{\varepsilon\mu}$.

Pour un matériau non-magnétique, ce que nous considèrerons de manière générale, $\mu = 1$ et la permittivité vaut $\varepsilon = n^2$. C'est une grandeur qui n'est en général pas constante, mais varie en fonction de la fréquence c/λ du champ électromagnétique. Quand ε est positive, l'onde lumineuse peut se propager dans le milieu. Dans le domaine des basses fréquences, micro-onde, infrarouge, voire visible, les *métaux* sont caractérisés par une permittivité négative (caractère réflecteur) ou imaginaire (caractère conducteur) et sont, de fait, opaques à la lumière. L'énergie lumineuse reçue par la surface métallique est donc renvoyée, du moins en partie, dans des directions éventuellement multiples (phénomène de diffusion), sinon absorbée par le matériau (et convertie en chaleur).

A côté des propriétés optiques liés à la *nature* du matériau, s'ajoutent celles liées à la *structure* géométrique du système. La lumière peut ne pas se propager dans un milieu diélectrique quand celui-ci est périodiquement agencé, comme dans le cas des cristaux photoniques, dans leur bande interdite. S'agissant d'un milieu réfléchissant, la structure d'une surface en donne automatiquement une au champ lumineux qui l'environne. Les réseaux de diffraction, par exemple, sont des surfaces matérielles présentant un profil spatial périodique. Le champ électromagnétique réfléchi par ce genre de système obéit alors à des règles de propagation spécifiques : la lumière est renvoyée dans des directions privilégiées qui dépendent de l'angle d'incidence, et de la longueur d'onde avec laquelle on travaille. Les réseaux ont ainsi la remarquable capacité de séparer les différentes composantes monochromatiques d'un spectre lumineux. Toutefois les réseaux *métalliques* manifestent, outre les phénomènes de diffraction classiques, des comportements plus singuliers, qui ont longtemps plongé les scientifiques dans la perplexité.

Historiquement, c'est R.W.Wood[4], en 1902, qui remarqua le premier des zones d'extinction imprévues dans le spectre de réflectivité spéculaire des réseaux de diffraction. Les étroites bandes d'extinction apparaissaient à des fréquences régulièrement espa-

[2]L'annulation de l'onde incidente résulte d'un contre-champ interne issu des propriétés de polarisation (électrique ou magnétique) des particules constituant le matériau (contre-champ induit par des oscillations de type dipolaires pour un matériau diélectrique, mouvements des charges électroniques pour un métal).

[3]Voir *Principles of Optics*, de Max Born et Emil Wolf (Pergamon Press, 6eme edn, 1991).

[4]Philos. Mag. **4**, 396 (1902). "Uneven Distribution of Light in a Diffraction Grating Spectrum".

cées ou certains angles, et dépendaient, en outre, de la polarisation de la lumière. Ces anomalies de Wood, ainsi appelées par la suite, furent en partie expliquées par Lord Rayleigh[5] en 1907. Ce dernier avait exprimé, sous forme d'un développement en série, le champ diffracté par un réseau périodique soumis à la lumière polarisée. La somme obtenue (et qui constitue ce qu'on appella plus tard une onde de Bloch), comprenait des ondes *propagatives*, et *évanescentes* : les ordres de diffraction. La disparition ou l'émergence d'un ordre propagatif devait alors entraîner une redistribution de l'énergie rayonnée, donc un changement brutal dans la réflectivité spéculaire. Les angles (respectivement les longueurs d'onde) pour lesquels ce phénomène avait lieu furent appelés angles (respect. longueurs d'onde) de Rayleigh.

U.Fano[6] apporta, en 1941, un complément de réponse en considérant l'interaction de la lumière avec les électrons du métal : dans le cas de la polarisation magnétique transverse (champ magnétique colinaire aux sillons d'un réseau), les photons pouvait exciter des oscillations superficielles de la densité de charge : les plasmons de surface, que l'on peut percevoir comme des vagues électroniques à la surface du métal. L'énergie emmagazinée (et partiellement absorbée) au niveau de l'interface métallique impliquait ainsi une chute de la réflectivité, qui n'était pas attribuable aux ordres de diffraction.

En 1965, Hessel et Oliner[7] proposèrent une théorie plus générale des anomalies de Wood pour les réseaux métalliques. Ils prédirent notamment qu'une surface à corrugation périodique suffisamment *profonde* supportait des modes guidés de vecteur d'onde propre complexe ; ces modes électromagnétiques, existant dans l'une ou l'autre polarisation fondamentale, pouvaient entrer en *résonance* forcée, à des fréquences spécifiques bien différentes de celles de Rayleigh, et impliquer des extinctions supplémentaires dans le spectre de réflectivité du réseau. Les auteurs évoquèrent en particulier l'existence d'anomalies liées à des résonances électromagnétiques dans des cavités (gravures) du réseau.

L'idée n'est justement pas nouvelle puisque Wood avait déjà observé[8] des effets très colorés sur des films granulaires en sodium et potassium, qui ne pouvaient être attribués aux phénomènes de diffraction ou d'interférences, mais plutôt à un piégeage de la lumière dans des crevasses de la surface alcaline petites devant la longueur d'onde. Wood suggéra d'ailleurs d'étudier le cas du réseau périodique constitués de gravures rectangulaires (profondes du quart de la longueur d'onde), en référence à l'hypothèse de Lord Rayleigh selon laquelle les gravures étroites pouvaient, à des fréquences définies, se comporter comme des résonateurs absorbants, de la même manière qu'un mur rigide, perforé de canaux étroits, présentait des propriétés de réflexion résonante, dans le domaine *acoustique*[9]. Ces travaux faisaient ainsi un parallèle entre le fait que le son soit absorbé par un milieu poreux et l'existence de bandes d'absorption de la lumière par des surfaces cristallines rugueuses.

---

[5]Proc.Royal.Soc. **79**, 399-416 (1907). "On the Dynamical Theory of Gratings".

[6]Ann. Physik, **32**, 393 (1938) ; J.Opt.Soc.Am. **31**, 213 (1941). "The theory of anomalous diffraction gratings and of quasi-stationnary waves on metallic surfaces (Sommerfeld's waves)".

[7]Applied Optics **4**, 1275 (1965). "A New Theory of Wood's Anomalies on Optical Gratings".

[8]Philos. Mag, **38**, 98-112 (1919). "Optical properties of films of sodium and potassium".

[9]Philos.Mag. **39**, 225 (1920). "On Resonant Reflexion of Sound from a Perforated Wall."

Ainsi, sans que le métal soit soumis à quelque potentiel électrique que ce soit, mais du fait de sa structure particulière, une interface métallique peut entrer en résonance sous l'impact d'une onde lumineuse. Ces résonances électromagnétiques s'accompagnent alors d'une concentration de la lumière à la surface, qui n'est pas forcément détectable en champ lointain. Puisqu'il s'agit d'un couplage opto-géométrique "passif", les résonances en question ont été qualifiées, parfois, de résonances de "forme" (*shape resonance*, en anglais), parmi lesquelles on trouve naturellement les résonances de cavité (pour les structures en creux). Il existe en effet des conditions pour lesquelles la lumière se maintient (et s'accumule) dans des zones spatiales pouvant être très réduites.

Il paraît contre-intuitif que des photons de longueur d'onde λ puissent se localiser (être guidés ou piégés) dans des volumes inférieurs à λ^3, au lieu d'être rejeté à l'extérieur. Ce phénomène est pourtant optiquement possible dans le cas des structures métalliques (et parfois des cristaux ioniques) convenablement excitées. Toutefois, il ne s'agit plus vraiment de photons purs mais d'un *mélange* de lumière avec des oscillations de charge du métal : les plasmons-polaritons de surface, qui possèdent, eux, d'autres propriétés de propagation. Là encore, le comportement des ondes électromagnétiques fait implicitement appel à la théorie corpusculaire de la lumière[10].

Or on sait que la miniaturisation des dispositifs optiques est fondamentalement confrontée à la limite de diffraction, définie par le critère de Rayleigh : les dimensions transverses d'un guide d'onde ou d'une ouverture doivent être supérieures à la demi longueur d'onde pour que la lumière se propage à travers. Mais une fois supportée par des modes électromagnétiques de surface (plasmons), l'*information* ou l'énergie lumineuse peut être guidée le long de motifs métalliques de taille bien inférieure à la longueur d'onde du champ incident. Le contournement du critère de Rayleigh est l'un des grands enjeux de la Plasmonique.

Dans un tout autre registre, la *diffusion Raman exaltée en surface*, ou effet SERS (pour *Surface Enhanced Raman Scattering*), suscite encore un vif intérêt sur le plan fondamental dans la mesure où les travaux effectués sur les plasmons de surface semblent profitables à une meilleure compréhension des phénomènes en question. Découverte expérimentalement dans les années 70 par Fleischmann *et al*, [11], elle donna naissance à une spectroscopie à part entière[12]. Cette dernière utilise le fait que des molécules déposées sur une surface métallique *rugueuse* puis éclairées, émettent un signal Raman extraordinairement fort, ce qui les rend détectables même en très faible nombre. Ce phénomène remarquable révéla ainsi que le champ électromagnétique, juste *au niveau* d'une surface métallique corruguée, pouvait être *des milliers, voire des millions de fois plus intense que le champ lumineux incident.*

[10] A basses fréquences, les électrons d'un métal réagissent collectivement sous l'apparence d'une onde de densité de charge appelée plasmon. L'onde lumineuse (photonique) trouve donc un analogue (électronique) dans le métal avec lequel elle interagit, ce qui explique la possibilité physique d'un *couplage*, qui peut être traité d'un point de vue purement ondulatoire.

[11] M.Fleischmann, P.J.Hendra et A.J.MacQuillan, Chem.Phys.Lett., **26**, 163 (1974). "Raman spectra of pyridine adsorbed at a silver electrode".

[12] Cependant, c'est Van DUYNE qui fut le premier (en 1977) à reconnaître que l'effet était dû à l'aspect rugueux de surface et non à une plus grande aire exposée.

Les surfaces rugueuses présentant un effet SERS sont fabriquées empiriquement et employées de manière routinière dans les laboratoires de spectroscopie, mais les mécanismes fondamentaux de l'exaltation Raman restent encore mal compris à ce jour, en dépit des très nombreux travaux théoriques effectués pour y répondre[13]. L'idée souvent avancée consiste à dire que des amplifications géantes du champ électromagnétique ont lieu dans des cavités ou des interstices de très petites dimensions, et seraient supportées par des plasmons de surface résonnants, ou d'autres modes localisés. Le terme de "points chauds" (*hot spots* en anglais), a été introduit à propos pour désigner des zones spatiales "sensibles", de dimensions plus petites que la longueur d'onde, qui peuvent emagaziner une grande quantité d'énergie. Leur réalité est d'ailleurs attestée par des observations expérimentales relativement récentes[14]. Le *désordre*, en surface, serait notamment favorable aux phénomènes de localisation de la lumière.

Ainsi, les défauts d'une interface métallique peuvent agir comme des points d'ancrage de la lumière, où se condensent des paquets de photons (en fait, sous forme de polaritons), de la même manière que les électrons peuvent être piégés dans des puits de potentiel ou un potentiel périodique. Une rugosité de surface, même de faible amplitude, pourrait donc modifier sensiblement le champ lumineux environnant à cause des *résonances* électromagnétiques de multiples petits défauts ayant une certaine géométrie. C'est un point que nous aborderons pleinement en fin de rapport.

Toujours est-il que la possibilité de *produire* et de *contrôler* des points chauds, c'est-à-dire de *confiner quantitativement* la lumière dans des espaces de taille sub-longueur d'onde, suscite un intérêt très fort de la part des chercheurs. Pour appréhender théoriquement la question, en vue d'applications directes (que ce soit en télécommunication ou en biologie), il est nécessaire d'attribuer au défaut de surface une géométrie-type pertinente, accessible aux technologies de fabrication, et d'en étudier le comportement électromagnétique. Le cas des cavités (gravures) de profil rectangulaire est celui que nous avons choisi.

L'idée générale est qu'en les structurant artificiellement (et convenablement), les surfaces métalliques deviennent *fonctionnelles* (capteurs, nano-antennes, dispositifs à spectroscopie locale). En tant qu'interfaces entre la lumière et le métal, elles conjuguent les effets photoniques et électroniques sur des échelles éventuellement sub-longueur d'onde. Le pont qu'elles tracent potentiellement entre l'optique intégrée et les circuits électriques ouvre de nouveaux champs d'action, très prometteurs. C'est dans cette actualité scientifique que s'inscrit cette thèse.

[13] M.Moskovitz, Reviews of Modern Physics, Vol **57**, No 3, Part I (July 1985) ; A.Otto *et al*, J.Phys. : Condens.Matter **4**, 1143 (1992).

[14] Samuel Grésillon *et. al*, Phys.Rev.Lett. **82**, 4520 (1999). "Experimental Observation of Localized Optical Excitations in Random Metal-Dielectric Films"

1.2 Présentation du sujet de thèse

Comme l'indique le titre du rapport, mon travail a eu pour objet de comprendre et de maîtriser les mécanismes fondamentaux de localisation et d'exaltation de la lumière sur des surfaces métalliques corruguées, dont les indentations géométriques sont de dimensions sub-longueur d'onde. Nous nous intéressons en particulier aux structures *unidimensionelles* ***lamellaires***, *i.e.* des surfaces (infinies) gravées de sillons ou cavités de profil rectangulaire. Ce choix est justifié par le fait qu'il s'agit de systèmes modèles, bien contrôlés à la fois sur le plan théorique et expérimental.

Le principe est d'étudier la réponse optique de ces micro/nano-structures lorsqu'elles sont excitées par une onde lumineuse, plane monochromatique et polarisée (visible ou infra-rouge), dont la longueur d'onde est supérieure, voire très supérieure, à la taille des cavités. Le flux lumineux est considéré constant dans le temps (régime permanent). En observant alors ce qu'on obtient loin du système (spectre du champ réflechi ou transmis), conjointement à l'analyse de ce qu'il se passe au niveau de l'interface (résonances du champ électromagnétique local), on peut établir une corrélation entre les phénomènes en champ proche et les propriétés du système en champ lointain.

Un travail analytique systématique, permet de faire ressortir un ensemble de formules simples donnant les grandes tendances comportementales du système, et de cerner les paramètres physiquement pertinents qui gouvernent les phénomènes de résonance responsables des exaltations locales. Le but est alors de jouer sur ces grandeurs pour contrôler aussi bien le confinement spatial de la lumière que les amplifications du champ. La recherche des conditions de *plus forte* exaltation tiendra un rôle central. Les résultats peuvent déboucher sur des applications technologiques intéressantes, notamment dans les domaines spectroscopique et opto-électronique. Nous ne considérons cependant que des matériaux *non-magnétiques*, en l'occurrence des métaux nobles (comme l'or et l'argent).

Les travaux présentés sont essentiellement théoriques. Notre démarche scientifique peut être synthétisée de la manière suivante : le problème électromagnétique étant posé, on pousse le calcul à la main aussi loin que possible, avant d'effectuer les simulations numériques. Le travail analytique est éventuellement approfondi pour expliquer ou caractériser les phénomènes observés numériquement. Enfin, des expériences sont menées pour valider les prédictions théoriques. Cependant, les travaux (récents) rassemblés dans ce document n'ont pas tous leur illustration expérimentale.

Il est important de souligner que le traitement mathématique du problème s'effectue grâce à une approche exclusivement ***modale***. La méthode modale, dont il est question tout au long du rapport, consiste à chercher les *modes propres du champ électromagnétique* au sein d'une structure donnée (modes guidés, évanescents, liés, surfaciques, etc). La réponse optique du système est alors mise en relation directe avec l'excitation plus ou moins efficace de ces différents modes.

Précisons également que les structures métalliques lamellaires sub-longueur d'onde présentent une plus grande richesse de comportement lorsqu'elles sont excitées par un

champ polarisé *Transverse Magnétique* (TM), du simple fait que cette configuration implique, outre les phénomènes de diffraction pure, *le couplage de la lumière avec les plasmons de surface* du métal. Aussi est-ce la raison pour laquelle nous n'avons considéré que cette polarisation.

Le rapport est divisé en trois grandes parties, comprenant 2 à 3 Chapitres chacune. Le lecteur trouvera une bibliographie à la fin de chaque chapitre, ainsi que des compléments ou des éléments de démontration dans l'Annexe.

La partie I expose, dans un premier temps (Chapitre 2), les concepts fondamentaux du problème électromagnétique que nous considérons. Après une brève présentation des plasmons de surface, qui sont à la base de la physique contenue dans ce rapport, je rappelle le principe du développement modal. Le Chapitre 3 décrit les phénomènes de résonance électromagnétique dans un système simple : une cavité sub-longueur d'onde, isolée, ou itérée périodiquement (réseau). On verra pourquoi la lumière peut se concentrer dans de tels motifs avec des intensités supérieures, parfois de plusieurs ordres de grandeur, à celle du champ incident. Ces rappels détaillés et actualisés sont nécessaires pour aborder les parties II et III, sachant que ces dernières sont relativement indépendantes l'une de l'autre.

Les travaux théoriques constituant la partie II (Chapitres 4 et 5) ont été établis dans le cadre de la méthode modale "restreinte", qui fait appel à des approximations valables pour les matériaux de permittivité diélectrique fortement négative dans le domaine spectral considéré (en l'occurrence l'infra-rouge, pour l'or ou l'argent). Cette partie propose d'explorer les *nouvelles* résonances, particulièrement intenses, qui se produisent dans des arrangements de gravures *plus complexes*. Le contrôle effectif du confinement de la lumière *sur des échelles sub-longueur d'onde* sera illustré et discuté. On considèrera également la relation entre les propriétés de symétrie de la structure métallique et les effets de localisation. Enfin, des expériences sur des réseaux à plusieurs cavités par période permettent d'étayer un certain nombre de prédictions.

La partie III, divisée en trois chapitres, traite des réseaux dans le cadre, cette fois, de la méthode modale *exacte*, en vue d'étudier la réponse électromagnétique de très petites géométries, surtout dans le visible, ce que la méthode restreinte ne permet pas. Nous nous intéresserons uniquement aux propriétés optiques des réseaux métalliques (toujours en polarisation TM), bien que la permittivité des matériaux puisse être *a priori* quelconque. Les Chapitres 6 et 7 exposent respectivement le formalisme modal et l'exploitation numérique proprement dit. L'accent sera d'ailleurs mis sur la caractérisation des modes propres (interprétation physique). Le chapitre 8 final peut être lu presque indépendamment de tous les autres ; il porte sur l'étude de réseaux *très fortement* sub-longueur d'onde. Cela nous permettra de donner une explication plausible du phénomène d'*absorption optique anormale* dont les premières observations remontent à près de 30 ans, sans avoir eu d'explication satisfaisante à ce jour. Des exaltations géantes, dans les cavités du réseau métallique, seront également mises en évidence, ce qui nous permettra de discuter du lien entre l'absorption anormale et l'effet SERS.

A ce jour, une partie des travaux de thèse ont fait l'objet de trois publications :

- J. Le Perchec, P. Quémerais, A. Barbara, and T. López-Ríos, Phys.Rev.Lett. **97**, 036405 (2006) "Controlling Strong Electromagnetic Fields at Subwavelength Scales"
- P. Quémerais, A. Barbara, J. Le Perchec and T. López-Ríos, J.Appl.Phys. **97**, 053507 (2005). "Efficient excitation of cavity resonances of subwavelength metallic gratings"
- A. Barbara, J. Le Perchec, P. Quémerais and T. López-Ríos, J.Appl.Phys. **98**, 033705 (2005). "Experimental evidence of efficient cavity modes excitation in metallic gratings by attenuated total reflection"

Nota Bene : Tous les champs électromagnétiques calculés ici ont une dépendance temporelle harmonique, en $e^{-i\omega t}$, où ω est la pulsation en $rad.s^{-1}$. Les constantes diélectriques $\varepsilon(\omega)$ des métaux ont été calculées à partir des tables du *Handbook of Optical Constants of Solids* (E.D.Palik, Academic Press, New York, 1985). Le lecteur trouvera en Annexe, page 217, des informations générales sur la constante diélectrique, ainsi que des tableaux de valeurs pour l'or, l'argent et l'aluminium. Les spectres de réponse seront généralement représentés en fonction du *nombre d'onde* $1/\lambda$ (en cm^{-1}). L'Annexe contient un tableau donnant l'équivalent de cette grandeur en longueur d'onde ou en fréquence, ce qui peut être utile. $Re(z)$ et $Im(z)$ signifient, respectivement, la partie réelle et la partie imaginaire de z. Enfin, $\mathcal{C}$ (respectivement $\mathcal{R}$) désignera l'ensemble des nombres complexes (resp. réels).

Première partie

Théorie et Systèmes de Base

Chapitre 2

Fondamentaux du Problème Electromagnétique

2.1 Quelques rappels sur les plasmons de surface

Les *plasmons de surface* sont à la base des phénomènes physiques étudiés tout au long de cette thèse. Cette section rappelle les notions essentielles à leur sujet. Pour plus de détails, le lecteur se référera au livre de Raether [1]. On trouvera également de nombreux éléments d'information, de démonstration (à partir des équations de Maxwell), ainsi qu'un panorama d'applications, dans les livres [2] [3], et l'article de revue [4].

Un métal est un cristal d'ions baignant dans une mer d'électrons libres, ce qui en fait un plasma, électriquement neutre, où seules certaines charges négatives (électrons de conduction) sont mobiles. Un *plasmon* quantifie une oscillation *collective* du gaz d'électrons, qui peut être soit longitudinale (plasmon de *volume*), soit transverse (plasmon de *surface*, en bord de métal).

Toute interface *plane* entre un milieu diélectrique, de constante relative positive $\varepsilon_d = n_d^2$, et un milieu (non-magnétique) de constante diélectrique *négative* ε_m (métal)[1], possède un mode propre électromagnétique confiné au voisinage du dioptre, qui n'est autre que le plasmon de surface. Ce mode est décrit par la relation de dispersion :

$$k_x^{sp} = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\varepsilon_d \varepsilon_m(\omega)}{\varepsilon_d + \varepsilon_m(\omega)}} \quad \text{avec } k_y = \begin{cases} \sqrt{k^2\varepsilon_d - k_x^2} & \text{dans le diélectrique} \\ \sqrt{k^2\varepsilon_m - k_x^2} & \text{dans le métal} \end{cases}$$

Où $\omega = ck$ (avec $k = n_d \frac{2\pi}{\lambda}$) est la pulsation de l'oscillation dans le temps, et λ la longueur d'onde d'excitation dans le vide.

La relation $k_x^{sp}(\omega)$, représentée qualitativement en Figure 2.1, réalise une bijection entre les vecteurs d'onde $k_x \geq 0$ et l'intervalle fréquentiel $[0, \omega_{sp}]$, où ω_{sp} est la *pulsation de résonance du plasmon de surface*. A cette fréquence, $k_x >> 0$ et la pente de la

[1] Les plasmons n'existent pas dans le cas d'un métal parfaitement réflecteur, quand $\varepsilon_m = -\infty$. Si ε_m était fortement *imaginaire*, on serait plutôt dans le régime des ondes de Zenneck-Sommerfeld [5].

courbe de dispersion tend asymptotiquement vers 0, c'est-à-dire que la densité d'états, en surface, devient très grande[2]. La pulsation ω_{sp} est telle que $\boxed{\varepsilon_m(\omega_{sp}) = -\varepsilon_d}$ [3]

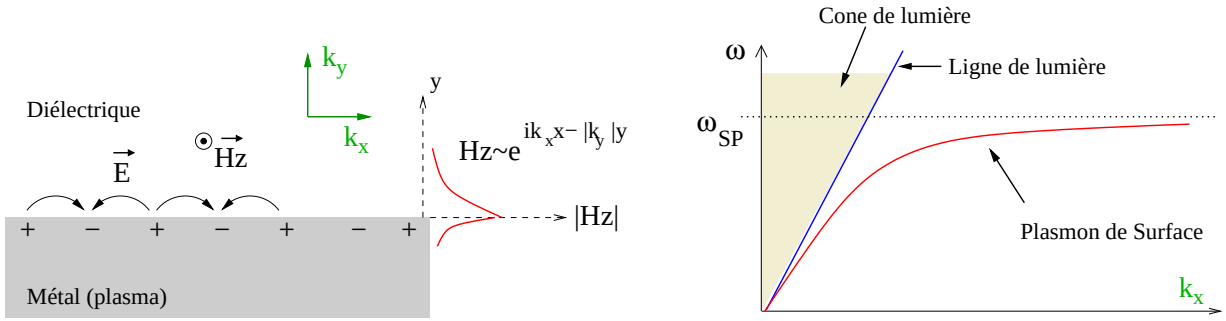


FIG. 2.1 – A gauche, schéma du champ électromagnétique et des charges associées à la propagation d'un plasmon de surface, caractérisé par des vecteurs d'onde k_x et k_y. Le champ est polarisé TM. La dépendance exponentiellement décroissante de H_z, au milieu, traduit le caractère localisé du champ à la surface. A droite, courbe de dispersion du plasmon d'une interface *plane*. La courbe est située sous le cône de lumière ($k_x > \omega/c$) : le plasmon n'est pas radiatif, ni excitable par la lumière propagative.

Un plasmon de surface est décrit par une onde se propageant (avec un certain amortissement) le long de l'interface métal/diélectrique, et qui s'atténue de manière exponentiellement décroissante de part et d'autre de l'interface, mais plus rapidement du côté métallique (on peut définir une "épaisseur de peau" des plasmons de surface). A cette onde est associée (voir Figure 2.1) une distribution superficielle des charges, dont le signe alterne d'autant plus rapidement que k_x est grand [4].

Grandeurs caractérisant un plasmon de surface pour une interface argent/air (exemple) : $\lambda_{spp} \approx 340$nm ($3.65eV$). A $\lambda = 500$nm ($20000cm^{-1}$), la longueur typique de propagation[5], suivant x, est de $12\mu m$, avec une extension spatiale (suivant y) de 220nm côté air et 25nm côté métal. A $\lambda = 1\mu$m ($10000cm^{-1}$), la longueur de propagation vaut de 222μm, avec une extension d'environ 1μ m côté air et 23nm côté métal.

Les plasmons de surface peuvent être excités, soit par un bombardement d'électrons (venant de l'extérieur), soit, dans certaines conditions précisées au paragraphe suivant, par la lumière quand celle-ci est polarisée Transverse Magnétique (champ magnétique perpendiculaire au plan d'incidence)[6]. L'entrée en résonance des plasmons

[2]En fait, le vecteur d'onde k_x est limité par un vecteur de l'ordre de $k_F = \frac{2\pi}{\lambda_F}$ où λ_F est la longueur d'onde de Fermi du métal. Pour des vecteurs de cet ordre, on excite les paires électron-trou du métal, les oscillations collectives du gaz électronique s'effondrent.

[3]Notons que les plasmons de volume ont, eux, des énergies $> \hbar\omega_{sp}$

[4]Aux basses fréquences, le plasmon de surface a un moment k_x proche de celui de la lumière, il a un comportement de type photon (tout en restant une onde de surface). Aux hautes fréquences, le plasmon de surface, de grand vecteur d'onde $k_x >> k$, revêt un caractère davantage électronique.

[5]les longueurs caractéristiques sont données par les inverses des parties imaginaires des vecteurs d'onde k_x et k_y du plasmon de surface. Valeurs de la constante complexe $\varepsilon_{Ag}(\omega)$ tirées de [6].

[6]Un autre point de vue est de dire que ces ondes de surface correspondent à l'existence d'un pôle

s'accompagne alors d'une *exaltation de l'intensité du champ* au niveau du dioptre (localisation d'énergie). Le cas de l'excitation optique, toutefois, implique un couplage entre les photons incidents et les électrons du métal, c'est pourquoi les plasmons excités par la lumière sont souvent appelés Plasmon-Polariton de Surface (SPP en anglais).

Dans cette thèse, nous n'aurons affaire qu'à des plasmons de surface excités optiquement. Comme $k_x^{sp} > k$, le vecteur d'onde k_y est imaginaire : ce ne sont pas des modes propres radiatifs (le champ est évanescent dans le sens perpendicualire à la surface). On ne peut donc pas, *a priori*, les exciter avec une onde lumineuse plane *propagative* (dont le $k_{//} < k$). Il existe cependant deux moyens de contourner le problème : i) soit par l'excitation d'une onde *évanescente* (telle que $k_{//} > k$), toujours polarisée TM (configuration de Réflexion Totale Frustrée ou *Attenuated Total Reflexion* [7] par exemple), ii) soit par l'ajout d'un pseudo-moment, dû à la structure de l'interface métallique (*via* un réseau périodique ou plus généralement *via* une surface rugueuse).

2.2 Profil des structures étudiées et méthode modale

La Figure 2.2 montre le profil général des structures étudiées au cours de cette thèse. Il s'agit d'une collection de rainures à profil rectangulaire, gravées dans une surface métallique. Ces rainures (ou cavités) sont dites ouvertes si leur fond n'est pas métallique. On étudiera aussi bien une cavité isolée qu'un nombre n de cavités, arrangées périodiquement ou non.

Le problème est de calculer le champ électromagnétique dans tout l'espace. Dans un premier temps, il est naturel de décomposer le système global en trois régions spatiales, notées I, II et III, comme c'est indiqué en Figure 2.2.

L'orientation des axes du repère cartésien sera le même dans tout ce rapport.

- la région I, dite région d'incidence ou de réflexion, de constante diélectrique relative $\varepsilon_I = 1$ (air ou vide), comprend le champ incident (venant des $y > 0$, avec un angle d'incidence θ) et le champ réfléchi par la surface corruguée.

- la région II, zone stratifiée où alternent des portions métalliques (de constante diélectrique ε_m) et diélectrique (de constante ε_d), selon l'arrangement des rainures.

- la région III, de permittivité relative ε_{III} (métallique ou non), dite région de transmission.

Les travaux contenus dans ce rapport reposent essentiellement sur la physique des plasmons de surface. Leur excitation dans de telles structures requiert d'exciter le système avec un champ lumineux polarisé TM (ou P, selon les conventions) : $\vec{k}$ est le

dans les coefficients de réflexion de Fresnel d'une interface métal/diélectrique. Un tel pôle n'apparaît qu'en polarisation TM (pas en TE).

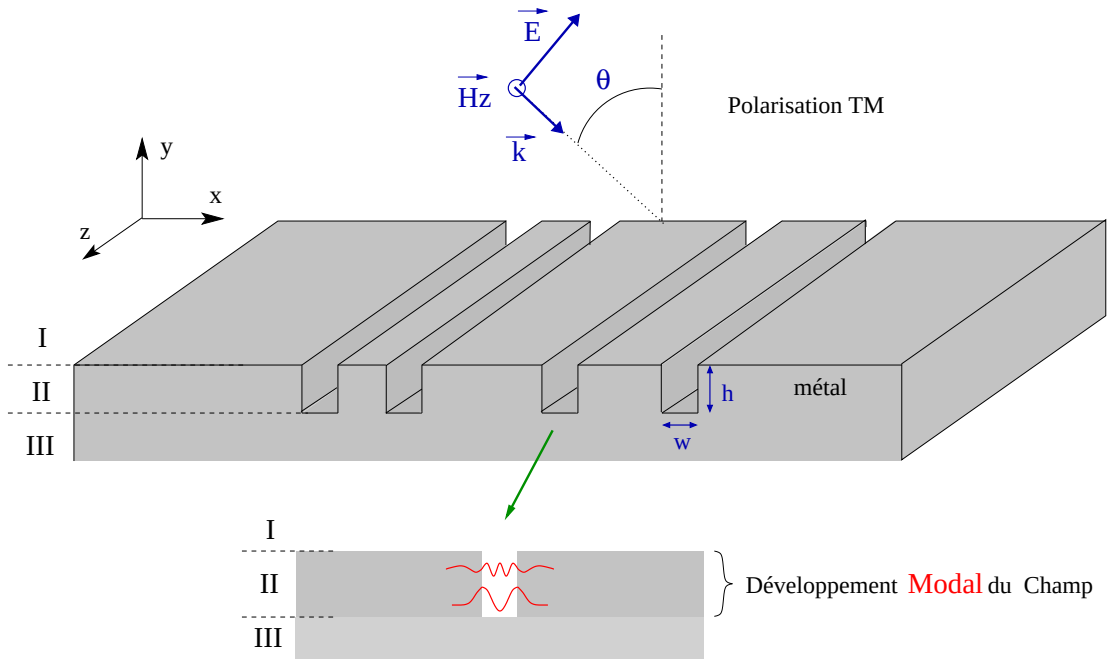


FIG. 2.2 – Schéma général des structures métalliques étudiées : surface plane infinie, flanquée de rainures rectilignes de largeur notée w et de profondeur notée h. Le champ incident est polarisé TM. En-dessous : vue en coupe d'une gravure, appelée aussi cavité. Le champ interne à la région (II) sera décrit par un développement modal.

vecteur de propagation, le champ $\vec{E}$ est compris dans le plan d'incidence (x, y), et le champ H_z est *colinéaire aux rainures* (Figure 2.2). L'angle d'incidence sera noté θ.

Dans un deuxième temps, il s'agit d'exprimer les champs dans chacune de ces trois régions, puis de les raccorder entre eux en appliquant les conditions aux limites appropriées (équations de Maxwell) au niveau des interfaces (I/II) et (II/III).

On sait que le champ électromagnétique doit obéir à une équation de Helmholtz $\Delta u + \varepsilon k^2 u = 0$, dans chaque zone homogène du système.

Les régions I et III sont homogènes. On peut décomposer le champ électromagnétique sur un continuum d'ondes planes, sous la forme d'une transformée de Fourier généralisée :

$$H^{I \text{ ou } III} \sim \int_{-\infty}^{+\infty} F(Q) e^{i(Qx \pm qy)} dQ \quad \text{avec} \quad Q^2 + q^2 = k^2$$

où $k = (2\pi)/\lambda$ et λ la longueur d'onde d'excitation dans le vide.

Lord Rayleigh [8] a montré que si la région II est occupée par un réseau d-périodique, le champ réfléchi (ou transmis) par le réseau peut directement s'écrire comme une somme discrète d'ondes planes pseudo-périodiques (ondes de Bloch)[7] :

[7] Le développement de Rayleigh contient donc déjà des conditions aux limites implicites (interfaces

$$H^{I \text{ ou } III} \sim \sum_{n=-\infty}^{+\infty} F_n e^{ik(\gamma_n x \pm \beta_n y)}$$

avec $\gamma_n = \sin\theta + n\frac{\lambda}{d}$, et $\gamma_n^2 + \beta_n^2 = 1$. On reviendra sur ces expressions au Chapitre 3.

La région II, en revanche, est structurée. Le champ électromagnétique doit donc respecter des conditions aux limites internes à cette région. L'application de ces conditions (*i.e.* la continuité des composantes tangentielles au niveau des interfaces verticales) impose alors au champ d'adopter des comportements spécifiques. On obtient en fait une base de *modes propres*, sur laquelle le champ peut se décomposer : c'est le ***développement modal***[8]. Il dépend des paramètres géométriques, de la polarisation choisie et des constantes diélectriques. La recherche des modes propres du champ dans la région II constitue le noyau de notre problème électromagnétique et sera détaillée en section suivante. On verra notamment, au paragraphe 2.3.2, que leurs constantes de propagation doivent vérifier une équation transcendante.

Lorsqu'un des modes entre en *résonance*, son poids devient prédominant dans le développement modal ; le champ ressemble alors essentiellement à la structure spatiale du mode résonnant. C'est en ce sens que la méthode modale permet de comprendre la réponse optique du système car elle permet d'attribuer les effets observés aux modes excités. Nous verrons qu'en polarisation TM, il existe deux catégories de modes propres :

1. les ondes surfaciques, présentes aux interfaces horizontales du système, parmi lesquelles on trouve les plasmons-polaritons de surface.

2. les modes de cavité, supportant un champ confiné dans les rainures, impliquant les plasmons des parois verticales.

Enfin, dans l'ensemble des modes propres d'une (ou de plusieurs) cavité(s) métallique(s) de largeur sub-longueur d'onde, le mode *fondamental* tiendra, de loin, la place principale ; au point qu'il nous sera permis de ne retenir que lui dans notre approche analytique. Nous pousserons alors autant que possible le travail calculatoire (simplifications, développement limité, etc), démarche qui se révèlera féconde pour expliquer la physique sous-jacente.

2.3 Développement modal du champ autour d'une fente métallique

Afin de bien comprendre en quoi consiste le développement modal, nous allons traiter le problème fondamental d'une *cavité isolée*, en polarisation TM. Le but de cette section est donc d'exprimer le champ électromagnétique dans la région (II), correspondant, ici, à une couche métallique infinie perforée d'une rainure unique.

I/II et II/III périodiques, et condition d'ondes sortantes).

[8]En fait, le développement de Rayleigh est également un développement modal.

2.3.1 Equations électromagnétiques

Pour dégager le comportement du champ autour d'une cavité (ou d'une fente, si on travaille en transmission), il n'est pas utile de savoir ce qui se trouve exactement au-dessus et en-dessous du motif. La recherche du développement modal est, en effet, indépendante de la profondeur de cavité h. Il s'agit donc de trouver les modes propres d'une strate diélectrique de largeur w, tenaillée entre deux blocs métalliques.

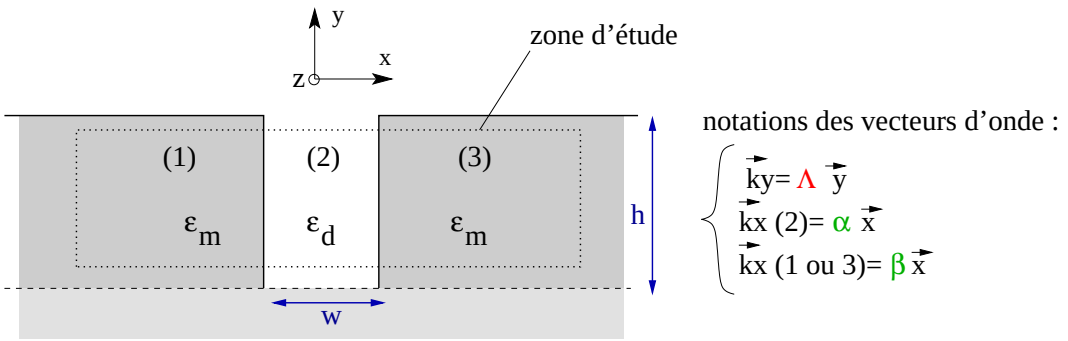


FIG. 2.3 – Schéma, en coupe, d'une cavité métallique isolée, symétrique, de largeur w et de constante diélectrique ε_d. La constante du métal est notée ε_m. La zone d'étude utile au développement modal est découpée en 3 sous-régions notées (1),(2),(3). A droite figurent les vecteurs d'onde des champs dans chaque sous-région. Le vecteur k_y se conserve dans toute la zone d'étude.

La démarche consiste d'abord à séparer, naturellement, la région (II) en trois sous-régions, indicées (1), (2) (3), comme le montre la Figure 2.3. Les champs électromagnétiques $\vec{E}$ et $\vec{H}$ vérifient l'équation de Helmoltz, dans chaque sous-région définie :

$$\begin{cases} \vec{\Delta}\vec{u} + k^2\varepsilon_m\vec{u} = 0 & \text{dans les régions métalliques (1) et (3)} \\ \text{et} \quad \vec{\Delta}\vec{u} + k^2\varepsilon_d\vec{u} = 0 & \text{dans la région diélectrique (2)} \end{cases}$$

Avec $k = \frac{2\pi}{\lambda} = \omega/c$. Ici, $\vec{u} = \vec{u}(x, y, z)$ représente aussi bien $\vec{E}$ que $\vec{H}$.

Suivant l'orientation des axes fixée, et considérant uniquement la polarisation Transverse Magnétique, la connaissance du seul champ magnétique H_z suffit à résoudre le problème en sa totalité, puisqu'alors $H_z = H_z(x, y)$, $H_x = H_y = 0 = E_z$,

$$E_x = \frac{i}{\omega\varepsilon_0\varepsilon_r}\frac{\partial H_z}{\partial y} \quad \text{et} \quad E_y = \frac{-i}{\omega\varepsilon_0\varepsilon_r}\frac{\partial H_z}{\partial x}$$

ε_r représente ici la constante diélectrique relative du milieu où on se place.

En plus des équations de Helmholtz, les champs doivent obéir aux conditions aux limites au niveau des deux interfaces verticales. Ces conditions sont, en polarisation TM, la continuité des champs magnétiques et électriques tangentiels (H_z et E_y) :

$$H_z^{(1)}|_{x=-w/2,y} = H_z^{(2)}|_{x=-w/2,y} \qquad \frac{1}{\varepsilon_m}\frac{\partial H_z^{(1)}}{\partial x}|_{x=-w/2,y} = \frac{1}{\varepsilon_d}\frac{\partial H_z^{(2)}}{\partial x}|_{x=-w/2,y}$$

$$H_z^{(2)}|_{x=w/2,y} = H_z^{(3)}|_{x=w/2,y} \qquad \frac{1}{\varepsilon_d}\frac{\partial H_z^{(2)}}{\partial x}|_{x=w/2,y} = \frac{1}{\varepsilon_m}\frac{\partial H_z^{(3)}}{\partial x}|_{x=w/2,y}$$

Où $H_z^{(j)}$ correspond au champ magnétique de la région $j = 1, 2$ ou 3.

La géométrie rectangulaire nous autorise à chercher des solutions par la technique de *séparation des variables*, c'est-à-dire des champs écrits sous la forme générale $u(x, y) = X(x) \cdot Y(y)$. Les relations de continuité conduisent à la nécessaire *conservation du vecteur d'onde k_y au passage des interfaces verticales.* On notera ce vecteur $\boxed{k_y = \Lambda}$ (à différencier de la longueur d'onde λ). On a alors $\forall x \in \mathcal{R}$ et $\forall y \in [-h, 0]$,

$$H_z^{(1)}(x, y) = (A_1 e^{i\beta x} + B_1 e^{-i\beta x}).(C_1 e^{i\Lambda y} + D_1 e^{-i\Lambda y}) \tag{2.1}$$
$$H_z^{(2)}(x, y) = (A_2 e^{i\alpha x} + B_2 e^{-i\alpha x}).(C_2 e^{i\Lambda y} + D_2 e^{-i\Lambda y}) \tag{2.2}$$
$$H_z^{(3)}(x, y) = (A_3 e^{i\beta x} + B_3 e^{-i\beta x}).(C_3 e^{i\Lambda y} + D_3 e^{-i\Lambda y}) \tag{2.3}$$

Avec

$$\begin{cases} \alpha = \sqrt{k^2\varepsilon_d - \Lambda^2} \ (= k_x \text{ dans la région (2)}) \\ \\ \beta = \sqrt{k^2\varepsilon_m - \Lambda^2} \ (= k_x \text{ dans les régions (1) et (3)}) \end{cases}$$

A ce stade, nous n'avons rien supposé sur le paramètre w. D'autre part, Λ est *a priori* quelconque. Supposons, pour simplifier, que la constante du métal ε_m est réelle, purement négative (en toute rigueur, s'agissant de métaux conducteurs, ε_m est complexe, ce qui implique un amortissement supplémentaire). Les ondes électromagnétiques ne peuvent se propager dans la cavité, suivant y, que si $\Lambda^2 > 0$, *i.e.* Λ réel. Selon le domaine d'appartenance de Λ^2, on peut intuiter l'allure des ondes décrites par les expressions générales des champs ci-dessus. La Figure 2.4 en détaille le comportement dans le plan transverse (x, y) du système.

Comme $\varepsilon_m < 0$ ici, Le vecteur β peut être réel ou imaginaire[9]. Or, pour avoir un sens physique, les ondes présentes dans les régions métalliques ne doivent jamais diverger quand $x \to \pm\infty$: une discussion s'impose donc tout naturellement sur la nature de β, et chemin faisant, nous allons faire émerger les deux grands ensembles de modes propres de notre système élémentaire : les *modes liés* (β imaginaire) et les *modes diffusés* (β réel).

2.3.2 Modes liés : l'équation aux valeurs propres

D'après ce qui vient juste d'être dit, commençons par traiter le cas où : *β est imaginaire*, *i.e.* $\Lambda^2 > k^2\varepsilon_m$ (avec $\varepsilon_m < 0$). Les exponentielles divergentes, dans (2.1) et (2.3), doivent être abolies : $A_1 = 0 = B_3$. Il ne peut s'agir que d'ondes évancescentes suivant x en pénétrant dans le métal. Suivant y, elles peuvent être guidées, ou non. Les relations de passage précédemment écrites nous ramènent à un système basique à 4 équations et 4 inconnues, dont le déterminant doit être nul pour que les solutions

[9] *N.B. :* la racine d'un nombre complexe n'est pas définie de manière univoque. On conviendra toujours que $z^{1/2} = \sqrt{|z|}e^{-iarg(z)/2}$. Si a est positif, $\sqrt{-a} = i\sqrt{a}$

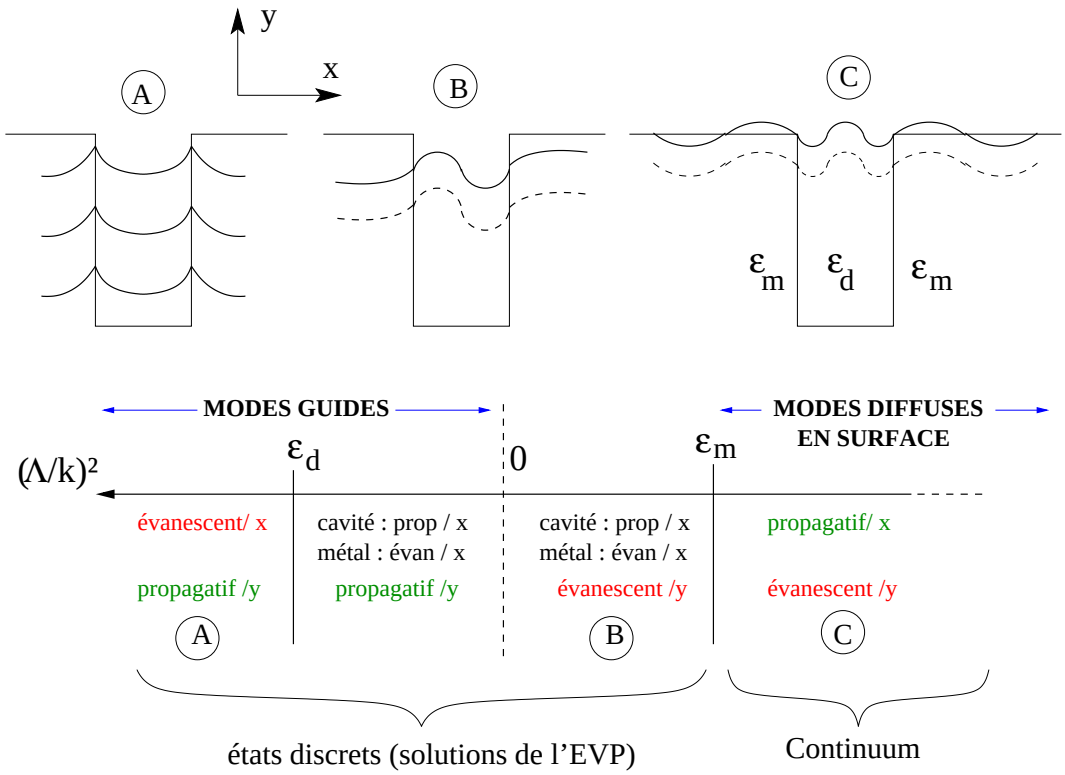


FIG. 2.4 – Allure des modes propres électromagnétiques dans l'environnement d'une cavité symétrique (isolée), selon le domaine d'appartenance de Λ^2 (pol. TM, $\varepsilon_m < 0$). Les zones A et A' correspondent aux ondes guidées dans la cavité ($\Lambda > 0$), avec $\alpha \in \mathcal{C}$ dans A (ondes liées aux parois verticales) et $\alpha \in \mathcal{R}$ dans A'. La zone B représente des ondes évanescentes dans le métal et non-guidées dans la cavité ($\Lambda \in \mathcal{C}$ et $\alpha \in \mathcal{R}$). Ces trois zones constituent un ensemble modal discret. Enfin, la zone C représente le continuum des ondes de surface (horizontale) propagatives pour tout x.

existent (recherche de modes propres). On trouve alors que Λ^2 doit vérifier une équation transcendante, paramétrée par w, ε_m et ε_d :

$$\cos(\alpha w) - \frac{i}{2}[\frac{\alpha\varepsilon_m}{\beta\varepsilon_d} + \frac{\beta\varepsilon_d}{\alpha\varepsilon_m}]\sin(\alpha w) = 0 \tag{2.4}$$

Où Λ est implicitement contenu dans α et β. La démonstration est en Annexe, page 220. Il s'agit ici de la polarisation TM. En polarisation TE (dite aussi S), il suffit d'ôter les constantes diélectriques apparaissant explicitement dans le terme fractionnel. On notera que la profondeur h n'intervient pas dans la détermination des modes.

On a ainsi obtenu ce qu'on appelle une **Equation aux Valeurs Propres (EVP)**, d'inconnue Λ^2, qui donnent exclusivement des états du champ *liés* à la cavité. Cette dernière, en tant que défaut dans un milieu homogène métallique, peut être perçue comme une "source" électromagnétique potentielle.

L'EVP peut être factorisée (*cf* page 220) et se scinder en deux "sous-équations"

aux valeurs propres, donnant, chacune, un sous-ensemble de modes liés :

$$\tan(\alpha w/2) + i\frac{\beta\varepsilon_d}{\alpha\varepsilon_m} = 0 \Rightarrow \left| \begin{array}{l} H^{(2)}(x) = A\cos(\alpha x)\cdot(C_2 e^{i\Lambda y} + D_2 e^{-i\Lambda y}) \\ \text{Modes PAIRS en } x \end{array} \right. \tag{2.5}$$

$$\tan(\alpha w/2) + i\frac{\alpha\varepsilon_m}{\beta\varepsilon_d} = 0 \quad \Rightarrow \left| \begin{array}{l} H^{(2)}(x) = A\sin(\alpha x)\cdot(C_2 e^{i\Lambda y} + D_2 e^{-i\Lambda y}) \\ \text{Modes IMPAIRS en } x \end{array} \right. \tag{2.6}$$

On trouvera, toujours en Annexe B.1, quelques compléments au sujet de ces deux équations. Une simple considération de symétrie de la structure nous indique, plus généralement, que tous les modes propres envisageables sont soit pairs, soit impairs, par rapport à l'axe médian $x = 0$ de la cavité (ce n'est pas vrai pour un réseau à cause de la pseudo-périodicité, on le verra au Chapitre 6 du rapport).

2.3.3 Modes diffusés : le problème du continuum

L'autre cas de la discussion entamée précédemment est le *cas β réel, i.e.* $\Lambda^2 < k^2\varepsilon_m$.

On conserve alors, dans nos champs (2.1) à (2.3), écrits en page 17, toutes les exponentielles (ondes progressives et régressives suivant x). De fait, le système d'équations est sous-numéraire (on a 6 inconnues) et il n'apparaît aucune condition spontanée sur la valeur de Λ^2 : *le champ entier des vecteurs d'onde $\Lambda^2 < k^2\varepsilon_m$ est permis* ([10]). C'est ce que reflète la Figure 2.4. On a affaire à un véritable *continuum* d'ondes diffusées au niveau de la surface (non seulement au niveau des interfaces air/métal horizontales, mais aussi dans la zone diélectrique). Une part de ce continuum "construit" notamment les modes plasmons de l'interface métallique horizontale[11].
Un tel continuum apparaît également dans l'étude d'un guide d'onde diélectrique planaire [9], où il correspond à l'ensemble des ondes s'échappant du coeur de gaine (modes "rayonnés"). La différence notable est que le continuum est, dans ce cas, *borné*, du fait de la positivité des constantes diélectriques. Les ondes diffusées sont stationnaires, paires ou impaires, s'étendant à l'infini suivant x. Le traitement d'un guide d'onde diélectrique par la Méthode Modale Exacte (MME) est alors faisable en discrétisant finement le continuum, ce qui n'empêche pas de recourir à de solides outils mathématiques [9].

En revanche, la tâche est beaucoup plus ardue dans le problème d'une fente métallique (ou d'un nombre *fini* de fentes). La question est alourdie par le caractère *complexe* de ε_m, et par la nécessité de tronquer le continnuum (ici infini). Je n'ai, pour ma part, pas pu traiter le problème d'un nombre fini de cavités métalliques, par la Méthode Modale Exacte. D'ailleurs, de nombreux chercheurs s'intéressant à ce genre de système,

[10] Du reste est-on ramené à étudier un problème similaire à celui, connu en mécanique quantique, d'une barrière de potentiel V traversée par une particule d'énergie $E > V$. Ce problème ne se résout que si l'on donne une direction d'origine à la particule. Pour la cavité métallique, on n'a pas de telle condition *a priori* puisqu'on cherche les modes *propres*.

[11] L'autre part du continuum construit les ondes purement photoniques, diffusées par la fente, et qu'on rencontre aussi bien en polarisation TM que TE.

ont dû user d'approximations judicieuses, pour simuler la réponse optique (*via* cette méthode). Ces approximations ont été introduites par A.WIRGIN *et al*([10], [11]). J'en détaillerai plus loin les grandes lignes, car elles ont servi à effectuer les travaux constituant les parties I et II de la thèse.

=>*A posteriori*, on sait que ce sont les modes discrets (dont le mode fondamental) qui donneront au champ interne à la cavité le comportement essentiel. Mais on ne peut pas obtenir de réponse quantitative fiable sans prendre en compte la contribution d'une part significative du continuum. A cela s'ajoute la possibilité que des modes discrets (états liés à la cavité) puissent, en changeant la fréquence d'excitation, "basculer" dans le continuum (devenir mode diffusé) ou vice-versa, et conduire à des *résonances dites de diffusion*. On imagine que seule une fraction du continuum aura un poids non négligeable, mais il est possible que les ondes liées aux interfaces horizontales supérieures et inférieures, puissent se coupler à travers l'épaisseur h du métal. Quelle part du continnum retenir alors ?

Dans le cas plus simple d'un ***réseau lamellaire***, la *périodicité discrétise automatiquement le continuum. TOUS les modes propres sont alors liés (ou bloqués), et sont solutions d'une seule et même équation aux valeurs propres* (voir chapitre 6). C'est pourquoi la Méthode Modale Exacte ne sera exploitée que pour l'étude des réseaux (à 1, et 2 fentes par période).

2.3.4 Résumé du développement modal

La discussion amorcée en page 17 sur la valeur possible de β nous a donc permis d'établir que le champ électromagnétique, dans une structure du type cavité rectangulaire, peut être décrit, indépendamment de la profondeur h, par :

1) un *ensemble discret* et fini, noté $\mathcal{D}$, de modes propres localisés (au niveau des cavités), avec $\mathcal{D} \subset \mathcal{C}$.

2) un *continuum* représentant toutes les ondes de surface pouvant potentiellement apparaître aux interfaces horizontales (continuum infini des valeurs $\Lambda^2 < k^2\varepsilon_m$).

Bien sûr, la solution *générale* du problème est construite à partir des 2 ensembles de modes propres :

$$H_z^{(2)}(x,y) = \sum_{\beta\in\mathcal{D}} u_\beta(x,y) + \int_{\beta\in\mathcal{R}} u_\beta(x,y)d(\Lambda^2) \quad \text{avec } \beta = \sqrt{k^2\varepsilon_m - \Lambda^2}$$

Dans un système stratifié de n fentes ou n gravures métalliques, on est conduit à un résultat similaire.

A ce stade, les modes propres régis par l'EVP introduite en section 2.3.2, méritent une attention particulière. C'est parmi eux que se trouve le mode fondamental, dont l'importance sera capitale au cours notre étude théorique. L'EVP ne se résout pas facilement, à cause de sa nature transcendante (non-linéarité) et du caractère complexe de ε_m. Pour essayer de saisir le genre de solutions données par cette équation, on peut commencer par considérer le cas du métal "parfait" ($\varepsilon_m = -\infty$). On en tirera des

informations essentielles. On passera ensuite au cas du métal réel pour voir comment évoluent les choses. La discussion sur le développement modal exact s'arrêtera alors là, dans ce chapitre, mais sera repris dans la partie III du rapport. J'introduirai au chapitre suivant, les approximations qui permettent de traiter notre système par une méthode (modale) restreinte.

2.3.5 Modes propres dans le cas du métal parfait

Afin de mieux cerner les modes propres liés à une cavité métallique (isolée), étudions l'EVP introduite en page 18 en considérant le métal parfaitement conducteur : dans ce cas, $\varepsilon_m = -\infty$. Des équations (2.6) et (2.5), on obtient immédiatement :

$$\begin{cases} \alpha = 2p\frac{\pi}{w} \quad (p \geq 0) \quad \text{pour les modes } \underline{\text{pairs}} \\ \\ \alpha = (2p+1)\frac{\pi}{w} \quad (p \geq 0) \quad \text{pour les modes } \underline{\text{impairs}} \end{cases}$$

Soit : $\boxed{(\Lambda_p/k)^2 = \varepsilon_d - (\frac{p\lambda}{2w})^2 \ , \quad \forall p \geq 0}$.

Le champ magnétique étant nul dans le métal parfait, il n'est décrit qu'au sein de la cavité, comme une combinaison linéaire de modes propres, avec $\forall x \in [-w/2, w/2]$ et $\forall y \in [-h, 0]$:

$$H_z^{(2)}(x,y) = \sum_{p=0}^{+\infty} \cos(p\pi(\frac{x}{w} + \frac{1}{2})) \cdot (C_p e^{i\Lambda_p y} + D_p e^{-i\Lambda_p y})$$

Nous avons là un développement modal explicite.

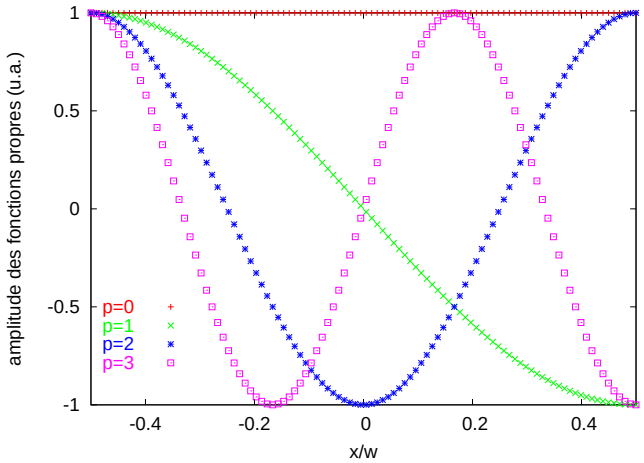


FIG. 2.5 – Allure des fonctions $\cos(p\pi(\frac{x}{w} + \frac{1}{2}))$ (pour $p = 0, 1, 2, 3$) décrivant les modes propres du champ magnétique (en polarisation TM) au sein d'une cavité à parois parfaitement conductrices. La cavité est large de w et centrée en $x = 0$. Les 2 axes verticaux du graphe matérialisent les parois.

Les fonctions propres $(\cos(p\pi(\frac{x}{w} + \frac{1}{2}))_p$ sont représentées en Figure 2.5. Elles constituent une base orthogonale.

Le ***mode fondamental*** $p = 0$ est donc *pair*, il correspond à $\Lambda = k\sqrt{\varepsilon_d}$ et sa dépendance suivant x dans la cavité est uniforme : $\cos(\alpha x) = 1$. Contrairement aux modes d'ordres supérieurs, il n'a *aucune fréquence de coupure* : il est toujours propagatif, suivant y, ce qui en fait un *mode de guide d'onde permanent.*

On *ne* rencontre *pas* ce cas de figure avec la polarisation TE[12].

On peut dire quand même un mot sur le continuum des ondes surfaciques : il n'existe pas dans le métal parfait. Il n'y a donc que des états discrets, confinés dans la cavité (ensemble dénombrable infini).

2.3.6 Extension au métal réel

Considérons maintenant le cas d'un métal réel, dont la constante diélectrique relative ε_m est <u>finie</u>. Cette fois, le champ peut pénétrer à l'intérieur du métal (on le verra en Figure 2.10), mais de manière limitée : on définit ainsi une épaisseur de peau (*cf* Table page 219). Supposons que $\Re(\varepsilon_m) << 0$, et étudions l'écart (petit) que nous faisons par rapport au cas de parois parfaitement conductrices. Maintenant, $\alpha \approx \frac{p\pi}{w} + \delta\alpha$.

On montre alors facilement (voir en Annexe, page 221) qu'en régime sub-longueur d'onde ($w << \lambda$) :

$$\begin{cases} p = 0 & : \frac{\alpha}{k} \approx i\sqrt{\frac{2\varepsilon_d}{kw\sqrt{|\varepsilon_m|}}} \quad \text{avec } \alpha w << 1 \\ \\ p \neq 0 & : \frac{\alpha}{k} \approx \frac{p\lambda}{2w} - 2\frac{\varepsilon_d}{p\pi\sqrt{|\varepsilon_m|}} \end{cases}$$

On regardera tout particulièrement la nouvelle dépendance en w par rapport au cas du métal parfait. Notons que lorsque l'entier $p \nearrow$, $\delta\alpha \to 0$: les vecteurs d'onde des modes de rang élevé bougent peu.

De la relation $\Lambda^2 = k^2 - \alpha^2$, on voit que si $w \to 0$ (cavité très étroite), le vecteur d'onde $k_y = \Lambda$ du mode fondamental peut tendre vers des valeurs hautement positives, alors que *tous les autres modes deviennent extrêmement évanescents*, sinon inexistants ($\Lambda^2 << 0$). En revanche, dans le cas de parois parfaitement conductrices, le mode fondamental ne bouge pas. On voit donc la grande différence qui sépare le métal parfait du métal réel, lorsqu'on tend vers de *petites géométries.* Nous allons éclaicir, dans la section suivante, la raison physique de ce phénomène.

2.4 La cavité sub-longueur d'onde

Les chapitres 3, 4 et 5 du rapport de thèse ne porteront que sur l'étude de fentes à *ouverture sub-longueur d'onde* (*i.e.* de largeur $w << \lambda$), relativement profondes

[12]En polarisation TE, les rôles entre les modes pairs et impairs sont inversés, si bien que le mode fondamental $p = 0$ a une dépendance $\sin(\alpha x) = 0$. Le mode fondamental physiquement pertinent est alors l'ordre $p = 1$, qui, lui, est "coupé" si $\lambda > 2w\sqrt{\varepsilon_d}$.

($h \sim \lambda$). D'après ce qu'on a vu dans la section précédente, les modes propres liés à la cavité, d'ordre $p > 0$, sont fortement évanescents suivant y pour ce choix de dimensions. Seul le mode fondamental $p = 0$ reste propagatif. Il gouverne alors très largement le champ interne aux cavités, ce qui justifiera de ne retenir que lui dans les calculs analytiques qui viennent (on effectuera ce qu'on appelle "l'approximation unimodale"). Enfin, comme le mode fondamental est le seul à supporter le champ intra-cavité, ses constantes de propagation peuvent tout à fait définir un "indice effectif" pour la cavité sub-λ. C'est ce que la sous-section suivante va démontrer. Nous caractériserons ensuite la nature physique de cet indice.

2.4.1 Notion d'indice effectif de cavité

Reprenant ce qui a été établi dans la sous-section 2.3.6, le mode *fondamental*, en polarisation TM, et pour $w < \lambda$, a un vecteur d'onde $k_y = \Lambda_{p=0}$ tel que :

$$\frac{\Lambda}{k} = n_d \sqrt{1 + \frac{2i}{kw\sqrt{\varepsilon_m}}} \tag{2.7}$$

ε_m est a priori complexe. L'expression est valide tant que $(\frac{\Lambda}{k})^2 << \Re(\varepsilon_m)$. Ce résultat est proche de celui établi dans [12] (trouvé indépendamment). Si $n_d = 1$ (couche d'air ou vide) et $\varepsilon_m << 0$, alors on a *toujours* $\boxed{\Lambda/k > 1}$. Comme de plus α est imaginaire, il s'agit d'ondes guidées suivant y, faiblement évanescentes suivant x dans la cavité, et fortement évanescentes côté métal. Ce sont des ondes de surface se propageant le long des parois verticales (voir l'illustration en Figure 2.4).

En employant un vocabulaire plus proche de l'optique, on peut introduire, comme l'ont fait les auteurs de [13], la notion d'indice effectif d'une cavité sub-longueur d'onde, noté ici $\boxed{n_{eff} = \Lambda/k}$. Le champ interne à la cavité varie alors en $e^{ikn_{eff}y}$ ([13]).

Comme la permittivité relative du métal, n_{eff} est en toute rigueur *complexe*, et contient une (petite) partie imaginaire responsable de l'*affaiblissement* de l'onde lors de sa propagation (pertes par conduction). On peut écrire l'indice effectif sous la forme :

$$n_{eff} = n_0 + i \cdot n_1 \quad \text{avec } n_0 >> n_1 \text{ si } |\tfrac{\Im(\varepsilon_m)}{\Re(\varepsilon_m)}| << 1$$

Le point important, c'est qu'à $(k, \varepsilon(\omega))$ fixé, n_{eff} peut devenir très *supérieur* à n_d lorsque l'espace w diminue ($n_{eff} \sim \frac{1}{\sqrt{kw}}$ d'après l'équation (2.7)). Autrement dit, plus la largeur w est petite devant la longueur d'onde excitatrice, plus l'oscillation spatiale (suivant y) de l'onde guidée augmente (et plus son amortissement est rapide à cause de la partie imaginaire). Cela s'accompagne aussi d'un plus fort confinement du champ au niveau des parois verticales (l'extension spatiale du fondamental, suivant x, diminue)[14].

[13] **Attention :** cet indice effectif ne signifie surtout pas qu'on ait $k_x^2 + k_y^2 = (n_{eff}k)^2$, mais bien $k_x^2 + (n_{eff}k)^2 = k^2$, s'agissant du mode guidé ici. Son introduction a juste un intérêt pratique : il me semble plus explicite d'employer n_{eff} que de parler du vecteur k_y en cm^{-1}.

[14] Les longueurs caractéristiques des extensions spatiales suivant x, sont $\frac{1}{Im(\alpha)}$ dans l'air (avec $\alpha^2 = \varepsilon_d k^2 - \Lambda^2$), et $\frac{1}{Im(\beta)}$ côté métal. Lorsque $\varepsilon_m \to -\infty$, on a des ondes d'extension quasiment infinie dans l'air, comme guidées en incidence rasante, parallèlement à la paroi, et n'ayant d'existence physique, dans le métal, qu'au voisinage immédiat de l'interface.

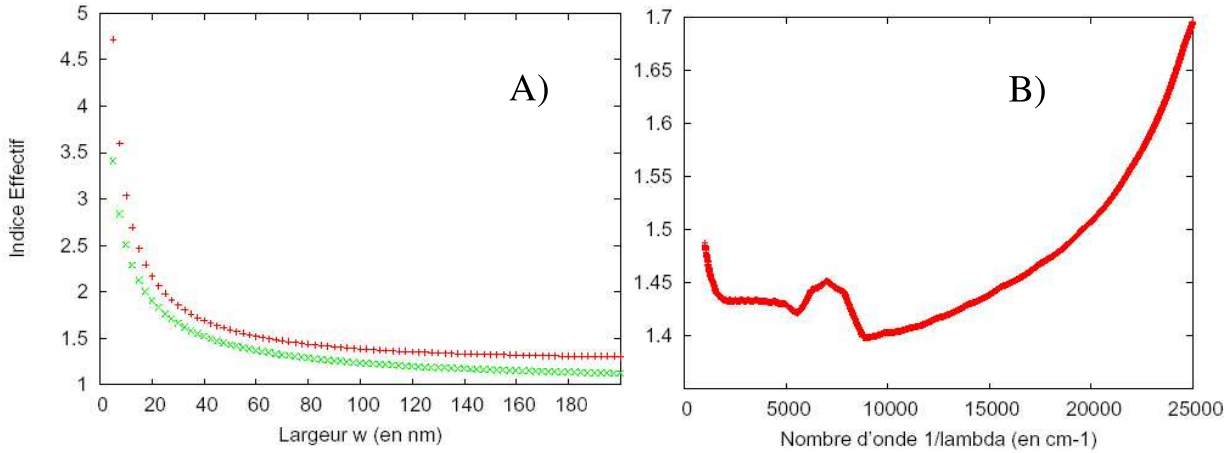


FIG. 2.6 – (couleurs) **A)** variation de l'indice effectif (solution exacte de l'EVP) dans une strate Ag/air/Ag, en fonction de w : en vert($\times$) à $2000cm^{-1}$ ($\lambda = 5\mu m$ et $\varepsilon_{Ag} = -909$), et en rouge($+$) à $20000cm^{-1}$ ($\lambda = 500nm$ et $\varepsilon_{Ag} = -8.57$). La constante du métal est prise réelle pour la représentation. **B)** variation de l'indice effectif, toujours dans une strate Ag/air/Ag, en fonction de la fréquence en cm^{-1} (infrarouge et visible) pour une largeur fixée $w = 50$nm. Le coude vers $7000cm^{-1}$ est directement lié à celui de la constante diélectrique du métal [6].

Le sens d'évolution que donne formule (2.7) est extrêmement important, les travaux présentés dans le dernier chapitre de la thèse en découle. La première partie des travaux exposés dans ce rapport traitera seulement de cavités ou fentes dont les parois verticales seront considérées parfaitement conductrices (égalité stricte $\Lambda/k = n_d$), justification à l'appui. On y mènera donc nos études sur des géométries pas trop sub-longueur d'onde, dans un domaine spectral où les métaux ont un $|\varepsilon_m|$ élevé.

2.4.2 Couplage des plasmons de parois : naissance d'un guide d'onde

Que se cache-t-il physiquement derrière l'indice effectif ? L'équation exacte qui donne, en polarisation TM, les modes propres pairs est $\tan(\alpha w/2) + i\frac{\beta\varepsilon_d}{\alpha\varepsilon_m} = 0$ (page 19). D'après ce qu'on a vu en section précédente, si $\varepsilon_m << 0$, le mode fondamental est tel que $\Lambda/k > 1$, avec α et β imaginaires purs. Il vient : $\alpha \tanh(|\alpha|w/2) = -\beta\varepsilon_d/\varepsilon_m$.

Si l'on fait tendre la largeur de fente $w \to \infty$, on trouve :

$$\Lambda = k\sqrt{\frac{\varepsilon_d \cdot \varepsilon_m}{\varepsilon_m + \varepsilon_d}}$$

qui n'est autre que la *relation de dispersion des plasmons de surface* d'une interface plane (paroi verticale) entre un métal et un diélectrique.

Ce simple travail "avec les mains" permet donc de cerner la physique qui entre en jeu lorsque deux parois métalliques sont mises en regard l'une de l'autre et séparées d'une distance sub-longueur d'onde. En rapprochant les parois, initialement très éloignées l'une de l'autre, on a un recouvrement des ondes de surface à travers le milieu

diélectrique et on lève une dégénérescence : les plasmons de chaque paroi se couplent, soit antisymétriquement, soit symétriquement (Figure 2.7).

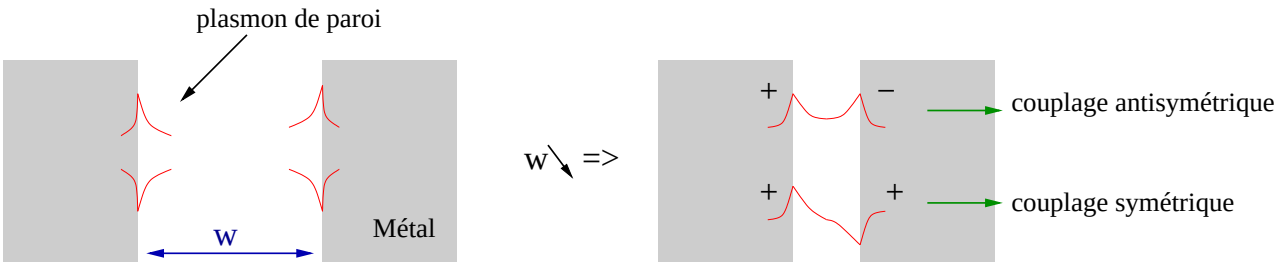


FIG. 2.7 – Schéma représentant le recouvrement des plasmons de surface de 2 parois métalliques planes mises en regard l'un de l'autre, lorsque la distance de séparation w diminue. Le qualificatif "symétrique" ou "antisymétrique" du couplage est donné par le signe des charges associées (explication du signe dans la section suivante).

Chaque plasmon couplé est alors décrit par sa propre relation de dispersion, comme l'illustrent les Figures 2.9 et 2.8. Le couplage "antisymétrique" correspond au mode fondamental du champ, pair suivant x, et construit un mode de guide d'onde quasi-ment *uniforme* au sein de la cavité, sans fréquence de coupure. L'autre plasmon, couplé "symétriquement", correspond au 2ème mode du champ, impair suivant x. Lorsque w devient sub-λ, ce plasmon n'est plus propagatif suivant y (car $\Lambda^2 < 0$, voir Figure 2.9). Les modes propres d'ordres supérieurs, que nous avons rencontrés dans le développement modal du champ, sont issus du couplage de plasmons harmoniques.

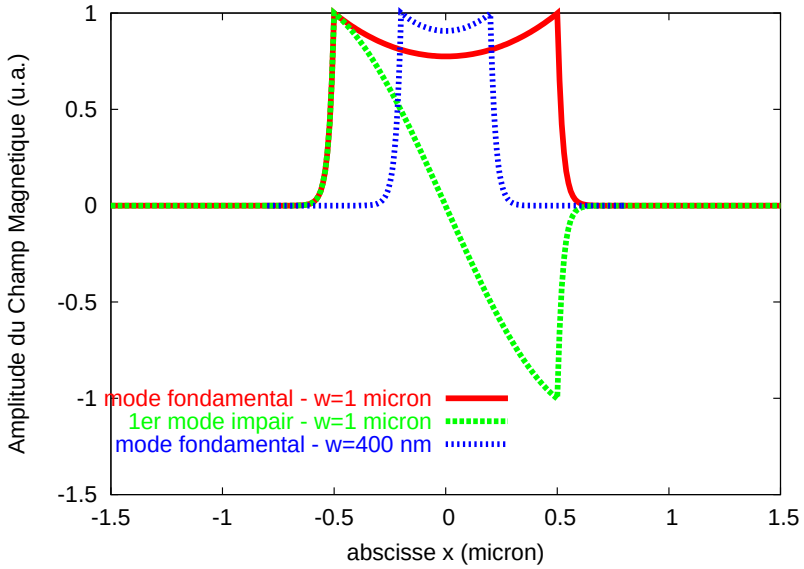


FIG. 2.8 – Allure, suivant x, des deux premiers modes propres du système stratifié argent/air/argent, en polarisation TM, avec $w = 1\mu$, pour $\lambda = 1\mu$m ($10000cm^{-1}$). Le système est centré en $x = 0$. Le mode fondamental est pair, et le 2ème mode, impair. Le fondamental, en particulier, tend vers une distribution "porte" pour une géométrie sub-λ ($w = 400$nm). Se référer à la figure 2.9 pour en voir la courbe de dispersion.

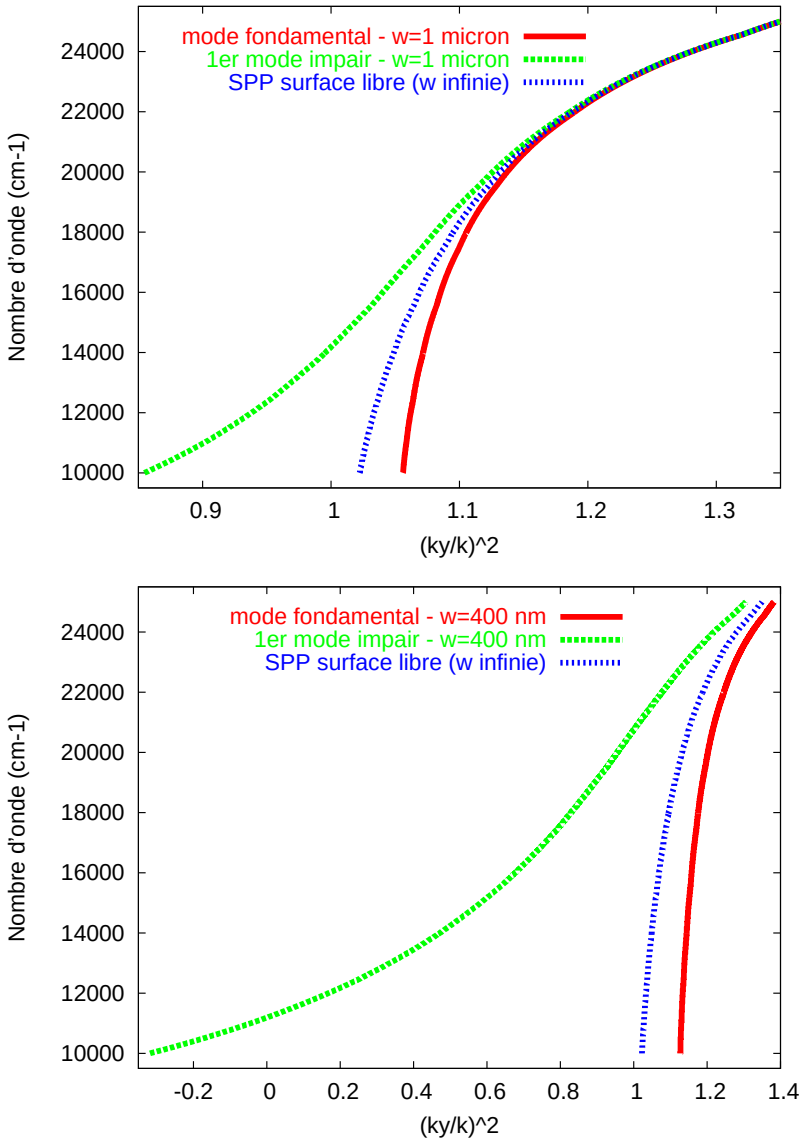


FIG. 2.9 – Courbes de dispersion des plasmons de surface de 2 parois métalliques en interaction, dans le cas d'une strate argent/air/argent, entre $10000cm^{-1}$ ($\lambda = 1\mu m$) et $25000cm^{-1}$ ($400nm$), pour $w = 1\mu m$ (en haut) et $400nm$ (en bas). L'abscisse correspond au carré du vecteur tangentiel $k_y^2 = \Lambda^2$ (normalisé). Le rapprochement des parois scinde la courbe des plasmons d'une surface libre en 2 courbes, selon le couplage antisymétrique (fondamental) ou symétrique (impair) des plasmons. Le mode impair peut être coupé ($\Lambda^2 < 0$) si $w << \lambda$, ce qui est le cas quand $\lambda < 11000cm^{-1}$ pour $w = 400nm$.

Le couplage des plasmons de surface ayant lieu dans une cavité étroite n'est pas le même que dans le système vu en "négatif", c'est-à-dire celui d'une lame métallique très mince. Bien qu'un phénomène similaire ait lieu, les courbes de dispersion sont très différentes [1].

Si on en revient maintenant à notre indice n_{eff}, on voit physiquement que, s'il augmente avec la diminution de w, c'est lié à la *force croissante du couplage* du plasma des régions métalliques 1 et 3, à travers le milieu diélectrique remplissant la cavité. A la limite $w >> 0$, les ondes plasmoniques de chaque paroi, évanescentes suivant x, n'arrivent plus à se recouvrir l'une l'autre, si bien que le guide d'onde uniforme s'effondre (le champ du mode fondamental étant $\propto \cos(\alpha x)$, il devient *nul* dans l'espace entre les parois)[15].

Remarque : dans le cas d'un métal *parfait*, le mode fondamental est exactement décrit par la fonction d'onde $p = 0$ de la Figure 2.5. Dans un tel cas, les plasmons de surface n'existent pas en toute rigueur, mais le mode guidé persiste dans la cavité. La fonction d'onde $p = 0$ est donc la limite électromagnétique des plasmons de parois couplés quand $\varepsilon_m \to -\infty$ (elle serait absente en polarisation TE). Si le métal est parfait, on employera exclusivement le terme de guide d'onde pour ce mode.

2.4.3 Champs et distribution de charge associés au mode guidé

Le champ interne à une cavité (ou gravure) *sub-longueur d'onde* sera principalement donné par le mode fondamental, seul à tenir un rôle de guide d'onde (les autres étant très évanescents). Il résulte du couplage "antisymétrique" des plasmons de parois. Il paraît opportun de bien caractériser l'environnement électromagnétique associé à un mode de si grand poids. Comme il est défini, dans le calcul modal exact, par une équation transcendante (indépendante de la profondeur de cavité), on peut évaluer le comportement spatial du champ magnétique, suivant x, de manière rigoureuse.
D'autre part, sans entrer dans de laborieux calculs, on sait que $E_x \propto \frac{1}{\varepsilon(x)}\frac{\partial H_z}{\partial y}$ et $E_y \propto \frac{1}{\varepsilon(x)}\frac{\partial H_z}{\partial x}$. On peut donc écrire le comportement, suivant x, des champs électriques. Ce comportement sera bien renseigné (qualitativement) par les fonctions suivantes :

$$E_x(x) \to \frac{\Lambda}{\varepsilon_m} H_z(x) \quad \text{dans le métal, et} \quad \frac{\Lambda}{\varepsilon_d} H_z(x) \quad \text{dans la cavité}$$

$$E_y \to \frac{\beta}{\varepsilon_m} H_z(x) \quad \text{dans le métal, et} \quad \frac{\alpha}{\varepsilon_d} H_z(x) \quad \text{dans la cavité}$$

La Figure 2.10 illustre l'exemple d'une cavité (ou d'une fente) remplie d'air, de largeur $w = 30nm$ dans le proche infra-rouge, le métal étant l'argent. Le mode fondamental correspond à un champ magnétique et à un champ $\vec{E}_x$ presque uniformes dans l'air. Notons surtout que *les distributions de charge situées de part de d'autre de la cavité sont de signe opposé* (*), ou plus généralement en quinconce (d'où le terme "antisymétrique"), et sont confinées au niveau des interfaces verticales. Le champ $\vec{E}_y$ est impair en x et possède un plan nodal, à savoir le plan médian $x = 0$. C'est ce qui fait qu'en première approximation, une ouverture sub-λ matérialise un moment dipolaire effectif ([14], [15]). Gardons ces observations dans un coin de notre tête, elles nous serviront plus tard (en Partie II).

[15] Au contraire, dans le cas de parois parfaitement conductrices, les choses ne bougeraient pas puisqu'on a toujours $\alpha = 0$ pour le fondamental.

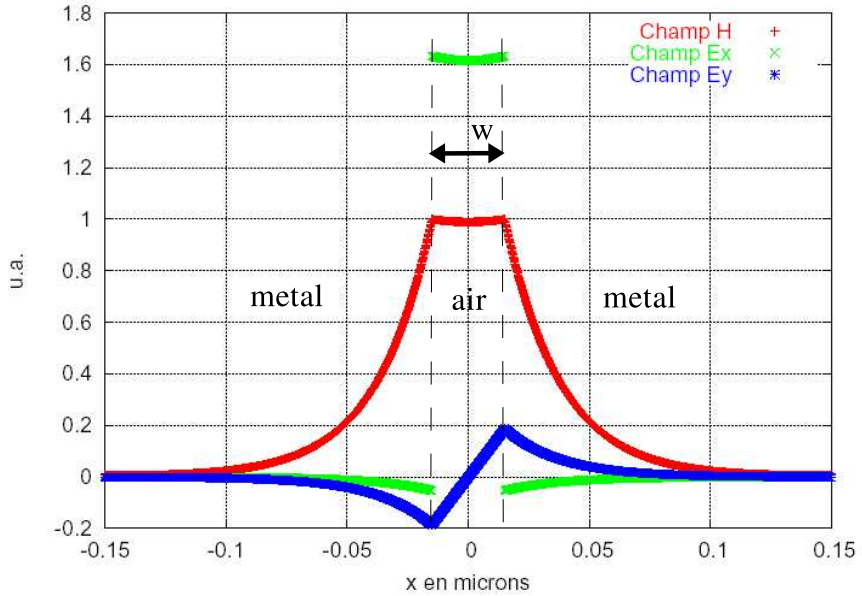


FIG. 2.10 – Allure, suivant x, des champs électriques et magnétiques (parties réelles) associés au mode fondamental, dans une strate argent/air/argent avec $w = 30$nm, à $\lambda = 833nm$ (soit $12000cm^{-1}$. $\varepsilon_{Ag} = -30.92 + i1.69$). L'ordonnée y est arbitraire (le développement modal ne dépend pas de h). La fonction décrivant le champ magnétique est un calcul *exact*.

(*) On rappelle en effet que si $\vec{n}$ est un vecteur normal à une surface séparant 2 régions, orienté du milieu 1 vers le milieu 2, la différence des champs électriques $(\vec{E}_2 - \vec{E}_1) \cdot \vec{n}_{1->2} = \sigma\varepsilon_0$: au passage de l'interface air/métal, le saut du champ E_x est proportionnel à la densité de charge σ située en surface (charge positive à gauche de la cavité, négative à droite en l'occurrence, mais le signe permute dans le temps étant donné la dépendance harmonique $e^{-i\omega t}$). On a aussi continuité de la composante suivant x du vecteur déplacement électrique ($\varepsilon_2 E_2 = \varepsilon_1 E_1$ au passage des parois).

La diminution de la largeur w implique donc à la fois un rapprochement des distributions de charge et une plus rapide oscillation suivant y (effet de "contraction" générale). On a vu en section 2.4.1 qu'à la limite où w tend vers 0, la fréquence spatiale Λ du mode diverge à l'infini : l'onde plasmonique se réduit logiquement à un point. En effet, ce cas signifie qu'on n'a plus qu'un *volume* de métal homogène (sans fente), au sein duquel il ne peut pas exister de modes transverses tels que les plasmons de surface. On comprend aussi pourquoi le plasmon couplé "symétrique" (mode impair), associé à une distribution de charges identiques pour les deux parois, est rapidement coupé (non-propagatif) quand $w/\lambda << 1$, à cause de la répulsion coulombienne.

Enfin, remarquons que $E_x \sim \frac{\Lambda}{\varepsilon_d} H_z(x)$ dans la cavité. Cela semble indiquer *a priori* une forte prédominance du champ électrique au fur et à mesure que Λ augmente (donc que w diminue par exemple). Nous nous en tiendrons là pour le moment. La suite de cette étude viendra dans le dernier chapitre du rapport...

Bibliographie

[1] H.Raether, *Surface Plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings* (Springer Verlag, Heidelberg, 1988), Vol. 111.

[2] M.Lahmani *et al*, *Les Nanosciences*, chapitre 16 Optronique (Ed. Belin, 2004).

[3] D.Courjon et C.Bainier, *Le Champ Proche Optique*, chapitre 5 (Ed. Springer Verlag, Paris, 2001).

[4] W.L.Barnes, A.Dereux et T.W.Ebbesen, *Nature* **424**, 824 (2003). "Surface plasmon subwavelength optics"

[5] D.Schumacher *et al*, *Surface Science* **408**, 203-211 (1998). "Surface plasmons and Sommerfeld-Zenneck waves on corrugated surfaces : Application to high-T_c superconductors"

[6] E.D.Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, New York, 1985).

[7] A.Otto, Zeitschrift fur Physik **216**, 398 (1968). "Excitation of non radiative surface plasma waves in silver by method of frustrated total reflection".

[8] Lord Rayleigh, *Philos.Mag.* **14**, pp. 60 (1907) ; *Proc.Royal.Soc.* **79**, pp. 399-416 (1907) "On the Dynamical Theory of Gratings".

[9] Pierre Mège, thèse de Doctorat en Astrophysique "Interférométrie avec des Guides d'Ondes Optiques - Théorie et Applications" (15 Novembre 2002 - UJF Grenoble).

[10] T.Lopez-Rios et A. Wirgin, *Solid State Communications* **52**, 197 (1984). "Role of waveguide and surface plasmon resonances in surface-enhanced Raman scattering at coldly evaporated films" ; A. Wirgin et T.Lopez-Rios, *Opt.Commun.* **48**, 416 (1984). "Can surface-enhanced Raman scattering be caused by waveguide resonances ?"

[11] A.Wirgin et A.A.Maradudin, *Progress in Surface Science*, Vol. **22**(1), pp.1-99 (1986). "Resonant response of a bare metallic grating to S-polarized light"

[12] S.Collin *et al*, article soumis. "Waveguide modes in nanoscale apertures in metal : coupled surface plasmons polaritons and skin depth effects"

[13] S.Astilean, Ph.Lalanne, M.Palamaru, *Optics Communications* **175**, 265-273 (2000). "Light transmission through metallic channels much smaller than the wavelength"

[14] J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, 3eme edn (New York : J.Wiley and Sons Inc., 1999).

[15] A.Degiron, H.J.Lezec, N.Yamamoto, T.W.Ebbesen, *Optics Communications* **239** (2004) 61-66. "Optical transmission properties of a single subwavelength aperture in a real metal"

Chapitre 3

Cavité Unique et Réseau Périodique

3.1 Introduction

Les fondamentaux du problème électromagnétique étant posés, nous allons pouvoir étudier les phénomènes d'exaltation et de localisation de la lumière dans des structures métalliques plus ou moins complexes (fente unique, n-uplet de fentes, réseaux simples ou à plusieurs cavités par période,...), à profil rectangulaire. Afin d'en étudier les éventuelles résonances, nous avons fait ressortir, au chapitre précédent, l'ensemble très général des modes propres de ce genre de système, illustré dans le cas basique d'une cavité isolée. Cela fut l'occasion d'explorer, pas à pas, une part de la physique fondamentale que présuppose l'excitation par une onde lumineuse polarisée TM, à savoir l'intervention des plasmons-polaritons de surface.

Il y a longtemps déjà, Hessel et Oliner [1] avaient prédit l'existence de résonances à la surface de réseaux métalliques, qui pouvaient induire des anomalies de réflexion (en champ lointain) très différentes des anomalies de Wood, notamment lorsque la corrugation de la surface était suffisamment profonde (cavité). Les deux auteurs avaient alors montré que la surface périodique supportait des modes guidés possédant un vecteur d'onde propre *complexe*, et dont les résonances étaient par conséquent *forcées* sous l'impact d'une lumière propagative. Ce que nous allons effectivement voir.

Dans le cas des cavités de largeur *sub-longueur d'onde* (cas qui nous intéresse tout particulièrement), on a vu que le mode propre fondamental était le seul à être propagatif suivant y. C'est donc lui qui canalise de manière prédominante l'énergie au sein d'une rainure. A condition bien sûr d'étudier des cavités *suffisamment profondes* : si l'amplitude h des crénelures est trop faible, les modes propres d'ordre supérieur, bien qu'évanescents, sont tous présents dans le voisinage des embouchures et ne sont plus négligeables [2]. En se restreignant alors au mode fondamental, nous pouvons affecter un indice effectif pertinent à la cavité sub-λ. Cet indice témoigne, physiquement, de la force du *couplage* entre les plasmons verticaux de la cavité (ces derniers construisent un mode presque uniforme selon x, guidant la lumière, sous forme de polaritons, le long des parois). Les plasmons de surface se propageant sur les interfaces métalliques horizontales restent, eux, proches de ceux d'une surface plane libre.

La nature et l'environnement électromagnétique du mode fondamental étant éclairci, l'étude de la réponse optique d'un système à base de sillons sub-λ est facilitée. Toute exaltation du champ à l'*intérieur* des cavités correspond nécessairement à une résonance du mode guide d'onde. Ce phénomène peut être induit de deux manières :

- Soit par des *résonances de type Fabry-Perot*, intrinsèquement liées au fait que la profondeur h des cavités est *finie*, et dans lesquelles on a une mise en place d'ondes stationnaires (les plasmons verticaux font des va-et-vient résonants entre l'embouchure et le fond des cavités).[1]
- Soit par des résonances à la surface externe du système, notamment des plasmons de surface horizontaux, cas rencontré dans les réseaux périodiques.

3.2 Méthode modale restreinte : approximations des conditions aux limites

Le problème d'une cavité métallique isolée ne semble avoir jamais été résolu par la Méthode Modale Exacte, du fait de sa difficulté mathématique, on en a exposé quelques raisons (non-exhaustives[2]). Néanmoins, une méthode modale efficace peut être appliquée pour un nombre quelconque de cavités (ou de fentes), moyennant des *approximations judicieuses sur les conditions aux limites.* A travers elles, le traitement modal est considérablement simplifié. De plus, on *s'affranchit de calculer le champ EM interne aux régions métalliques.* Les approximations sont celles-ci :

1. les champs, au niveau des interfaces horizontales (surface externe <u>et</u> fond des cavités), sont raccordés entre eux *via* l'impédance de surface approximée.
2. les parois verticales de(s) cavité(s) sont considérées parfaitement conductrices.

Wirgin *et al* [4] ont posés les bases de la méthode modale "restreinte" afin d'étudier les résonances de réseaux métalliques lamellaires (en polarisation TE ou TM). J'explique, dans les sections suivantes, en quoi consiste les approximations faites, ce qu'elles présupposent et quelles sont leurs limites. Les travaux de la Partie II du rapport ont été menés dans ce cadre théorique. Il est important de souligner que *les simulations prédites par la méthode modale restreinte sont bien fidèles aux relevés expérimentaux* (voir notamment les travaux [5], [6], [7] et [8]) portant sur des réseaux lamellaires en or, en transmission ou en réflexion dans l'infra-rouge.

[1] La forme rectangulaire des cavités n'est pas un impératif en soi. Sobnack *et al.*[3] ont étudié, théoriquement, la réponse, dans le visible, de réseaux métalliques dont les gravures sub-longueur d'onde avaient un profil plutôt triangulaire, en forme d'entonnoir. Ils ont montré la mise en place d'ondes stationnaires résonnantes dans les sillons, supportées là aussi par des plasmons de surface couplés (avec un maximum d'intensité au fond des crevasses)

[2] On n'a pas parlé, par exemple, de l'étape de projection des champs sur la base des modes propres {continuum+modes discrets}, afin d'obtenir les amplitudes d'excitation qui nous intéressent. C'est un point technique délicat.

L'essentiel est que ***seuls les plasmons de surface décrits par la partie linéaire de la courbe de dispersion*** (*i.e.* la partie tangente à la ligne de lumière), sont bien intégrés au modèle approximé, ce qui restreint d'emblée l'étude à des métaux de constante diélectrique élevée en module, donc au domaine spectral des micro-ondes ou infrarouge, s'agissant d'or, d'aluminium oubien d'argent. Dans la gamme infrarouge, l'approximation de parois parfaitement conductrices est raisonnable si la largeur des cavités (ou des fentes) est de quelques centaines de nanomètres (pas en-dessous), et la profondeur h ne doit pas être excessive (quelques μm tout au plus).

3.2.1 Raccord par l'impédance de surface

Les conditions aux limites au niveau d'une interface métallique réelle sont les conservations des champs électriques et magnétiques tangentiels. Au niveau du dioptre horizontal I/II (voir Figure 2.2, page 14), on a en polarisation TM, *dans* la région métallique :

$$\vec{E}_x^{(II)} = \frac{i}{\omega c \varepsilon_0 \varepsilon_m} \frac{\partial H_z^{(II)}}{\partial y} \vec{e}_x$$

$$\text{Soit} \quad E_x^{(II)} = Z_{II} H_z^{(II)} \quad \text{avec} \quad Z_{II} = \frac{\sqrt{\varepsilon_m k^2 - k_x^2}}{\omega \varepsilon_m \varepsilon_0}$$

(le champ est rentrant dans le métal, en $e^{-ik_y y}$, avec $k_y = \sqrt{\varepsilon_m k^2 - k_x^2}$, d'où un fort amortissement exponentiel si $\Re(\varepsilon_m) << 0$).

Le rapport Z_{II} entre les composantes des champs électromagnétiques tangentielles à l'interface plane I/II (côté métal) est appelée impédance de surface[3]. Une approximation consiste alors à écrire $k_y \approx k\sqrt{\varepsilon_m}$ quel que soit le vecteur k_x de l'onde diffusée dans l'épaisseur de peau, de sorte que Z_{II} soit une *constante*, égale à $1/(c\varepsilon_0\sqrt{\varepsilon_m})$.

Cette approximation, qui ne peut être appliquée du côté de la région (I), est particulièrement justifiée dans le cas d'un "bon" métal, *i.e.* dont la constante diélectrique relative $\Re(\varepsilon_m) << 0$ (ou plus généralement quand $|\varepsilon_I/\varepsilon_m| << 1$), ce qui vaut pour l'or ou l'argent dans le domaine infrarouge. Cela revient en effet à dire que les variations du champ électromagnétique suivant x, *dans* le métal, sont négligeables devant les variations suivant y, ce qui est physiquement pertinent puisqu'en pénétrant dans le métal, le champ lumineux chute très rapidement suivant la direction normale à la surface[4] : $\Re(\varepsilon_m) << 0$ implique que $|k_y/k_x| >> 0 => E_y/E_x = E_\perp/E_{//} << 0$.

[3]L'impédance d'un milieu est définie de manière générale, pour une onde polarisée rectilignement, par le rapport des champs électrique et magnétique (transverses à l'axe de propagation) ([9] page 359). Les champs normaux à la surface d'un *bon conducteur*, côté métal, sont négligeables en première approximation, et l'impédance *de surface* est alors définie par une relation vectorielle entre les champs tangentiels à la surface : $\vec{E}^{tan} = Z \cdot (\vec{n} \times \vec{H}^{tan})$, où $\vec{n}$ est un vecteur unitaire normal à l'interface plane, dirigé vers l'*extérieur* du métal ([9] page 355). La quantité $\vec{n} \times \vec{H}^{tan}$ est équivalente à un courant de surface, $\vec{E}$ correspond au voltage. Dans le cas de la polarisation TM, ici, il n'y a pas de composante du champ magnétique qui soit normale aux interfaces métalliques.

J'évoque par ailleurs un parallèle avec l'impédance acoustique, en Annexe B.3.

[4]d'où la définition de l'épaisseur de peau $\delta = 1/(k\Im(\sqrt{\varepsilon_m})$.

Il est bien connu qu'une surface parfaitement conductrice impliquerait la discontinuité du champ magnétique lors de sa traversée. Considérer maintenant le caractère réel du métal, *via* l'impédance de surface, entraîne la continuité des champs électrique E_x et magnétique H_z, de sorte que : $E_x^{(II)} - Z_{II} H_z^{(II)} = E_x^{(I)} - Z_{II} H_z^{(I)} = 0$ à la frontière du dioptre. Par conséquent :

$$\text{A l'interface air/métal} \qquad \frac{\partial H_z^{(I)}}{\partial y} + ikZH_z^{(I)} = 0 \quad \text{avec} \quad Z = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_m}}$$

Cette équation contient implicitement la continuité des champs E_x et H_z mais ne porte que sur le champ magnétique $H_z^{(I)}$, ce qui simplifie grandement la tâche de la résolution du problème : nous nous passons ainsi de chercher l'expression du champ interne au métal. Z est une impédance normalisée : $Z = Z_{II}/Z_0$ où $Z_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}}$ est l'impédance du vide.

Limites importantes de l'approximation

• Un défaut de surface, telle qu'une gravure sub-longueur d'onde, diffracte la lumière dans toutes les directions de l'espace. La part des ondes diffusées en surface du métal (évanescentes suivant y), ont un vecteur $k_x > k$. L'impédance approximée, qui suppose $k_y\sqrt{\varepsilon k^2 - k_x^2} \approx k\sqrt{\varepsilon}$, *n'intègre pas avec exactitude la physique des ondes de grand k_x*. Le modèle doit donc être consistant avec le fait que *le poids (ou l'amplitude) des ondes telles que $k_x >> k_{incident}$, soit négligeable devant celui des ondes de faibles k_x* (ce qui sera effectivement le cas) [5].

• La relation de dispersion des plasmons-polaritons de surface d'une interface plane métal/air est donnée par

$$k_x = k\sqrt{\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_m + 1}} <=> \varepsilon_m k_x^2 = (k_y^{air})^2$$

Les simulations basées sur l'approximation de l'impédance ne peuvent pas rendre compte, de manière réaliste, de l'excitation d'éventuels plasmons de surface correspondant à des vecteurs d'onde $k_x >> k$, notamment ceux du domaine visible.

3.2.2 Hypothèse de parois verticales parfaitement conductrices

Au niveau des parois verticales des cavités, l'impédance de surface est, cette fois, définie par $Z' = \frac{E_y}{H_z} \Rightarrow \boxed{Z' = \frac{k_x}{kc\varepsilon_0\varepsilon_r}}$

$$Z' = \left| \begin{array}{ll} \frac{\alpha}{kc\varepsilon_0\varepsilon_d} & \text{côté air} \\ \frac{\beta}{kc\varepsilon_0\varepsilon_m} & \text{côté métal} \end{array} \right.$$

[5] Il faudra revenir au rapport d'impédance exact $Z(k_x)$ si on veut étudier des phénomènes liés à l'excitation d'ondes de grands k_x (*i.e.* très localisées spatialement, sur la surface horizontale), notamment des surfaces à caractère désordonné. Le calcul des projections devient plus compliqué.

L'approximation de l'impédance de surface, au niveau des parois verticales, serait $Z' = \frac{1}{c\varepsilon_0\sqrt{\varepsilon_m}}$, (côté métal) et présupposerait donc, pour être justifiée, que $\beta = \sqrt{k^2\varepsilon_m - \Lambda^2} \approx k\sqrt{\varepsilon_m}$. Cela impliquerait d'avoir des valeurs propres Λ^2 toutes négligeables en module devant la constante diélectrique (modes variant lentement suivant y). Ce qui ne peut être vrai, à moins de se restreindre aux tous premiers modes, s'ils suffisent à rendre quantitativement compte de la réponse optique finale. D'autre part, on est ramené à résoudre l'équation transcendante

$$\cos(\alpha w) - \frac{i}{2}[\frac{\alpha}{\varepsilon_d Z'} + \frac{\varepsilon_d Z'}{\alpha}]\sin(\alpha w) = 0$$

pour trouver la base des modes propres, base qui n'est pas orthogonale du fait du caractère *complexe* de Z', ce qui complique fortement la technique de projection employée plus tard (section 3.3.2). L'approximation permettrait certes de prendre mieux en compte le caractère réel des parois de cavités (effets de l'absorption), mais nous serions confrontés à un *conflit de conditions aux limites vers les coins des fentes.* Cette approche est donc bancale.

Il est plus rigoureux, quitte à faire des approximations, de considérer les parois verticales parfaitement conductrices, de sorte qu'aux coins métalliques, la conditon "parois parfaites" s'arrête là où commence la condition "impédance de surface".

Enfin, l'hypothèse de parois parfaites donne des modes propres parfaitement connus, constituant une base orthogonale.

Un critère sur la validité de l'approximation

D'après la section 2.4.1 sur l'indice effectif d'une cavité sub-λ, l'approximation de parois parfaitement conductrices conduirait toujours, pour le mode guidé, à $\Lambda/k = n_d$. Pourtant, on verra qu'en dessous d'un certain seuil d'ouverture w, le couplage des plasmons de parois commence à jouer un rôle de plus en plus prépondérant : le vecteur $k_y = \Lambda$ augmente pour le mode fondamental, chose qui n'est pas prise en compte ici. L'approximation "parois parfaites" est ainsi justifiée pour des largeurs de fente w pas trop petites devant la longueur d'onde incidente (si toutefois $\varepsilon_m << 0$). J'ai envisagé un **critère** de qualité de cette approximation : celui consistant à dire que tant que si l'indice véritable $n_{eff}/n_d \leq 1.1$ l'approximation est raisonnable, soit $\frac{1}{kw\sqrt{|\varepsilon_m|}} \leq 1/10$, c'est-à-dire $\boxed{1 > kw \geq 10/\sqrt{|\varepsilon_m|}}$ ([6]).

A.N. : $|\varepsilon_m(Or)| = 30.5^2$ à $\lambda = 5\mu m$ ($2000cm^{-1}$). Approx. valable si $w > 260nm$.

Enfin, l'hypothèse de parois verticales parfaitement conductrices est de moins en moins soutenable quand la profondeur h des fentes devient trop grande, puisque, dans la réalité, la propagation des ondes le long des murs métalliques s'accompagent d'un amortissement. Il ne faut donc pas exagérer sur le rapport d'aspect w/h.

[6] L'idée d'employer un indice effectif de cavité tout en maintenant les parois parfaitement conductrices est intéressante mais il faut faire attention à ne pas violer la conservation de l'énergie (l'équation de Helmoltz $k_x^2 + k_y^2 = k^2$), si n_{eff} devient grand.

3.2.3 Bilan des conditions de raccords

Si on étudie des fentes (en transmission), les conditions de raccord sont :

1. La **continuité du champ magnétique** au niveau des embouchures :

$$\forall x \in [-w/2, w/2], \begin{cases} H^I|_{x,y=0} = H^{II}|_{x,y=0} \\ \\ H^{II}|_{x,y=-h} = H^{III}|_{x,y=-h} \end{cases}$$

2. La **condition de raccord par l'impédance de surface approximée**, au niveau des interfaces métalliques horizontales :

$$\forall x \notin [-w/2, w/2], \begin{cases} \frac{1}{\varepsilon_I}\frac{\partial H^I}{\partial y} + ikZH^I = 0 \quad \text{en } y = 0 \\ \\ \frac{1}{\varepsilon_{III}}\frac{\partial H^{III}}{\partial y} - ikZH^{III} = 0 \quad \text{en } y = -h \end{cases}$$

Avec $\boxed{Z = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_m}}}$. Les équations obtenues sont en fait *extensibles* au niveau des ouvertures, par continuité de E_x et H_z, si bien que :

$$\text{Pour tout } x, \begin{cases} \frac{1}{\varepsilon_I}\frac{\partial H^I}{\partial y} + ikZH^I = \frac{1}{\varepsilon_d}\frac{\partial H^{II}}{\partial y} + ikZH^{II} \quad \text{en } y = 0 \\ \\ \frac{1}{\varepsilon_d}\frac{\partial H^{II}}{\partial y} - ikZH^{II} = \frac{1}{\varepsilon_{III}}\frac{\partial H^{III}}{\partial y} - ikZH^{III} \quad \text{en } y = -h \end{cases}$$

Si on étudie des cavités, fermées au fond (région (III) remplie du même métal que la région (II)), on remplace simplement les équations de raccord à l'interface II/III ci-dessus, par la condition d'impédance de surface adaptée :

$$\forall x \in [-w/2, w/2], \quad \frac{1}{\varepsilon_d}\frac{\partial H^{II}}{\partial y} + ikZH^{II} = 0 \quad \text{en } y = -h$$

3.3 Calcul des champs dans un système de gravures sub-longueur d'onde

Nous allons maintenant résoudre le problème électromagnétique dans le cadre des approximations présentées plus haut (méthode modale restreinte), et calculer la réponse spectrale d'une cavité isolée, ou d'un réseau périodique de cavités. Les simulations numériques qui suivront seront accompagnées d'une étude analytique simple.

3.3.1 Expressions générales des champs

A) Champ dans la cavité : restriction unimodale

Considérant l'hypothèse de parois verticales parfaitement conductrices, le champ interne à la cavité est donné en section 2.3.5. L'application du raccord par l'impédance

de surface approximée, au fond de la cavité ($y = -h$), implique alors

$$D_p/C_p = r^{(p)} = (\frac{\Lambda_p/\varepsilon_d + kZ}{\Lambda_p/\varepsilon_d - kZ})e^{-2i\Lambda_p h}$$

Où $Z = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_m}}$ est l'impédance de surface ($= 0$ en métal parfait),
$(\Lambda_p/k)^2 = \varepsilon_d - (\frac{p\lambda}{2w})^2$ ($p \geq 0$), et D_p et C_p les coefficients définis en page 21.

Dans une cavité métallique de profondeur h, centrée en $x = x_0$, de constante diélectrique $\varepsilon_d = n_d^2$, le champ magnétique (en polarisation TM) s'écrit, en tenant compte de tous les modes :

$$H^{(II)}(x,y) = \sum_{p=0}^{+\infty} A_p \cos(p\pi(\frac{x-x_0}{w} + \frac{1}{2})) \cdot (e^{i\Lambda_p y} + r^{(p)}e^{-i\Lambda_p y})$$

Les coefficients A_p sont nos inconnues.

Dans le régime sub-longueur d'onde $kw < 1$, seul le mode $p = 0$ est propagatif (pas de fréquence de coupure) et supporte presque totalement le champ interne à la cavité. On peut alors raisonnablement se restreindre au fondamental et poser,

$$\forall y \in [-h, 0], \forall x, \quad H_z^{(II)}(x,y) = A(e^{in_d ky} + re^{-in_d ky}) \sqcap (x)$$

Où $r = (\frac{1+n_d Z}{1-n_d Z})e^{-2in_d kh}$ et la distribution "porte" $\sqcap (x) = \left| \begin{array}{l} 1 \ si \ x \in [-w/2, w/2] \\ 0 \ sinon \end{array} \right.$

La restriction unimodale sera extrêmement fructeuse pour mener l'étude analytique développée plus loin.

B) Champ réfléchi : transformée de Fourier

La gravure métallique sub-longueur d'onde peut être perçue comme un défaut de surface, qui, soumise à l'excitation d'une onde plane monochromatique, peut diffuser la lumière, *a priori* dans toutes les directions du demi-espace $y \geq 0$ (région I). Le champ réfléchi peut être naturellement décrit par une somme continue d'ondes planes "sortantes", de même pulsation, sous la forme d'une transformée de Fourier :

$$H^{reflechi}(x,y,t) = \int_{-\infty}^{+\infty} R(Q)e^{i(Qx+qy-\omega t)}dQ$$

$R(Q)$ représente l'amplitude (inconnue) du champ réflechi de vecteur d'onde (Q, q) où $q = \sqrt{k^2 - Q^2}$ ([7]). Les ondes telles que $|Q| > k$ sont surfaciques, les autres sont rayonnées. Le continuum d'ondes $(e^{iQx})_{Q \in]-\infty;+\infty[}$ constitue en fait la base propre de la région I [8]. Le champ total, dans la région I, comprend en plus l'onde incidente, arrivant avec un angle θ. Il vient finalement

$$H^I(x,y) = e^{ik(\sin\theta x - \cos\theta y)} + \int_{-\infty}^{+\infty} R(Q)e^{i(Qx+qy)}dQ$$

[7] $R(Q)$ est simplement la transformée de Fourier du champ dans le plan $z = 0$

[8] Dans le cas des réseaux d-périodiques, la base propre du champ réfléchi est discrétisée : $(e^{ik\gamma_n x})_{n \in]-\infty;+\infty[}$, avec $\gamma_n = \sin\theta + n\frac{\lambda}{d}$. C'est la base de Rayleigh [10].

3.3.2 Projections et résolution du problème

L'expression générale des champs étant posée, le coefficient A et la distribution $R(Q)$ sont nos deux inconnues. Leur détermination permettra de connaître les champs interne et externe à la cavité.

Les conditions de raccord (détaillées en sous-section 3.2.3), donnent quatre équations, qui conservent une dépendance en x. Pour s'affranchir de cette dépendance, la technique consiste à projeter convenablement les différentes équations sur les bases de décomposition du champ (la procédure est détaillée en Annexe, page 223, pour ne pas alourdir le corps du rapport). Nous obtenons de la sorte un *système d'équations linéaires modales*, reliant A et $R(Q)$, réductible à deux équations[9] :

$$A \cdot [1 + r - \frac{w}{\lambda}(1+Z)(1-e^{-2ikh}) \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{sinc^2(Qw/2)}{q+kZ} dQ] = V_0 \tag{3.1}$$

Avec $V_0 = \frac{2\cos\theta}{\cos\theta + Z} sinc(kw\sin(\theta)/2)$, le coefficient d'excitation.

$$\text{et } R(Q) = R_{sp} \cdot \delta(Q - k\sin\theta) + \frac{w}{\lambda}(1+Z)(1-e^{-2ikh}) A \frac{sinc(Qw/2)}{q+kZ} \tag{3.2}$$

Où $R_{sp} = \frac{\cos\theta - Z}{\cos\theta + Z}$ est la réflectivité spéculaire d'une surface métallique *plane*.
Le problème est alors **résolu**.

$\delta(Q - k\sin\theta)$ est la fonction delta de Dirac. Le pôle complexe de la partie non-spéculaire de $R(Q)$ correspond physiquement à l'onde du plasmon de surface d'une interface plane.

L'intégrale intervenant dans l'expression du coefficient de champ A sera appelée **intégrale de diffusion**. Dans le cas plus général d'un système à n fentes, chacune régie par le mode fondamental, le problème se résume à résoudre, cette fois, une équation matricielle du type $\mathcal{M}\mathcal{A} = \mathcal{V}$ (où $\mathcal{M}$ est une matrice d'intégrales de rang n, caractéristique du système, $\mathcal{A}$ est le vecteur inconnu des coefficients $(A_1, A_2, ..., A_n)$ des champs dans les cavités, et $\mathcal{V}$ le vecteur excitation). Plusieurs intégrales de diffusion entrent alors en jeu, liées au phénomène de rétrodiffusions multiples entre chaque cavité (on le verra dans les Chapitres 4 et 5).

3.3.3 Passage d'une fente isolée au réseau périodique

Cette sous-section n'a pas pour but de passer en revue la théorie des réseaux et les étapes calculatoires analogues à celles effectuées plus haut, mais d'exposer un point de vue qui conduit à l'essentiel des résultats. La cavité sub-λ est l'élément paradigmatique servant de point de départ fondamental à toute structuration plus complexe. Une modulation d-périodique est simplement une condition supplémentaire portant sur

[9] On aurait une équation matricielle multimodale si on prenait en compte plusieurs modes propres de cavité.

l'expression du champ électromagnétique, à savoir la condition de *pseudo-périodicité* pour tout champ u, dépendant explicitement des conditions d'incidence. Supposant l'onde incidente sous la forme $e^{ik(\sin\theta x - \cos\theta y)}$, on peut montrer que :

$$\forall n, \quad u(x+nd, y) = e^{in(k\sin\theta)d} \cdot u(x,y)$$

Le facteur $e^{in(k\sin\theta)d}$ est appelé coefficent de pseudo-périodicité (si celui-ci vaut 1, on dit qu'on est dans une condition de Littrow). Cette propriété permet de développer le champ réfléchi (ou transmis) par un réseau sous la forme d'une série de Fourier : c'est le *développement de Rayleigh* [10]. Le champ réfléchi s'écrit alors comme une somme convergente d'ondes planes "sortantes" :

$$u(x,y) = e^{ik(\sin\theta x - \cos\theta y)} + \sum_{n=-\infty}^{+\infty} R_n e^{ik(\gamma_n x + \beta_n y)}$$

Avec $\gamma_n = \sin\theta + n\frac{\lambda}{d}$, et $\gamma_n^2 + \beta_n^2 = 1$ qui n'est autre que la traduction de l'équation de Helmoltz vérifiée par chaque onde diffractée (pour une réflexion dans l'air). Les constantes de propagation γ_n et β_n proviennent d'une diffusion cohérente à l'échelle de tout le système, nous allons y venir. Le champ transmis à travers le réseau, s'écrira comme une somme légèrement différente

$$u(x,y) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} T_n e^{ik(\gamma_n x - \eta_n y)}$$

Avec cette fois $\gamma_n^2 + \eta_n^2 = \varepsilon_t$, où ε_t est la constante diélecrique (relative) du milieu de transmission.

Cependant, de tels développements ne seraient, en général, pas valides au sein même de la structure périodique, notamment quand celle-ci est à corrugation profonde, et à plus forte raison quand elle est décrite par des profils non-analytiques [12]-[13]. Le mieux est d'appliquer proprement les conditions aux limites internes au réseau pour trouver l'expression générale du champ : c'est le *développement modal.*

Chaque fente métallique est une source secondaire de lumière, habillée de sa propre sphère de diffusion du champ électromagnétique, diffusion s'opérant *a priori* dans *toutes les directions de l'espace* (ondes radiatives et surfaciques).

Dans un arrangement périodique de fentes, la superposition (linéaire) des champs réfléchis par chacune d'elles construit un champ réfléchi global répondant finalement aux propriétés d'*ondes de Bloch*. Les interférences constructives ou destructives entre *tous* les champs diffusés, font émerger des *directions privilégiées* spécifiques pour la propagation de la lumière : ce sont les *ordres de diffraction*. Dans un système comprenant un *nombre fini* de cavités diffusantes, aucune onde réfléchie de vecteur (Q,q) du continuum n'a de poids singulier (hormi le rayon spéculaire). Autrement dit, le passage au réseau *a discrétisé l'espace des vecteurs d'onde du continuum* Q, moyennant un pseudo-moment $\frac{2\pi}{d}$, d'où le passage d'une intégrale totale à une somme discrète.

$$\int_{-\infty}^{+\infty} R(Q) e^{i(Qx+qy)} dQ \quad \xrightarrow{periodisation} \quad \sum_{n=-\infty}^{+\infty} R_n e^{ik(\gamma_n x + \beta_n y)}$$

$$Q \longrightarrow k\gamma_n = n\frac{2\pi}{d} \quad et \quad q \longrightarrow k\beta_n$$

A partir du moment où on a résolu le problème d'un n-uplet quelconque de cavités, il n'est pas nécessaire de refaire les calculs lorsqu'on périodise à l'infini ce paquet de motifs. Le "court-circuitage" consiste à ***effectuer une convolution, dans les intégrales de diffusion obtenues, par le peigne de Dirac*** [10] suivant :

$$\frac{2\pi}{d}\sum_{n=-\infty}^{+\infty}\delta(Q-k\gamma_n) = \frac{\lambda}{d}\sum_{n=-\infty}^{+\infty}\delta(u-\gamma_n)$$

La démonstration figure en Annexe, page 224. Pour le reste, les coefficients de réflexion R_n, pondérant les ondes diffractées, seront donnés par

$$R_n = R_{sp}\cdot\delta_{n0} + \frac{2\pi}{d}R(Q=k\gamma_n)$$

Sachant qu'ici (et seulement ici), $R(Q)$ ne comprend pas le terme spéculaire $R_{sp}\delta(Q-k\sin\theta)$ déjà extrait (qui d'ailleurs, ne dépend jamais de la corrugation).

L'étude analytique que je vais mener maintenant pour une cavité isolée, sera donc rapidement transposable à celle du réseau périodique de cavités.

3.3.4 Formules analytiques essentielles

Les calculs présentés en sous-section 3.3.2, sont appliqués à un système où le milieu diélectrique dans la cavité est tel que : $\varepsilon_d = 1$. On peut alors écrire très simplement l'amplitude complexe A du champ lumineux interne à la cavité, de la manière suivante :

$$A = \frac{e^{ikh}}{2\sin(kh)e_0}\cdot V_0 \tag{3.3}$$

Où, d'une part

$$V_0 = \frac{2\beta_0}{\beta_0+Z}sinc(\gamma_0 kw/2)$$

Avec, d'autre part, pour une **cavité isolée** :

$$e_0 = \frac{1}{1-Z}[\cot(kh)-iZ] - i\frac{w}{\lambda}(1+Z)\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{sinc^2(kuw/2)}{\sqrt{1-u^2}+Z}du \tag{3.4}$$

Et pour le **réseau** d**-périodique** de cavités :

$$e_0 = \frac{1}{1-Z}[\cot(kh)-iZ] - i(1+Z)\frac{w}{d}\sum_{n=-\infty}^{+\infty}\frac{sinc^2(kw\gamma_n/2)}{\sqrt{1-\gamma_n^2}+Z} \tag{3.5}$$

[10] $N.B.$: la convolution doit s'opérer au sein des intégrales de diffusion non modifiées, écrites sur l'intervalle de départ $]-\infty,+\infty[$ (l'intégrande est par exemple paire en u, ce qui conduira à une simplification, mais le peigne n'est pas "symétrique" en son indice n, à cause de l'*angle d'incidence, a priori non-nul*)

On rappelle que $\gamma_n = \sin\theta + n\frac{\lambda}{d}$ et $\beta_n = \sqrt{1-\gamma_n^2}$ ($\beta_0 = \cos\theta$). Pour un bon métal, l'impédance $Z = 1/\sqrt{\varepsilon_m} = Z_1 - iZ_2$ avec $Z_1, Z_2 > 0$ et $Z_2 >> Z_1$. [11]

Le terme e_0 figurant au dénominateur du coefficiant A est d'importance centrale dans notre étude analytique. Les conditions éventuelles d'annulation de e_0 conduisent en effet à des résonances du mode guide d'onde (éventuellement excité par des plasmons horizontaux dans le cas du réseau périodique), donc à une concentration de la lumière au sein de la cavité (et/ou à la surface). Quant aux champs électromagnétiques proprement dit, ils s'expriment, dans la cavité (isolée ou en réseau), comme suit : $\forall x \in [-w/2, w/2]$ et $\forall y \in [-h, 0]$

$$H_z(x,y) = \frac{1}{1-Z} \cdot \frac{V_0}{e_0 \sin(kh)}[\cos(k(y+h)) - iZ\sin(k(y+h))]$$

et

$$E_x(x,y) = \frac{1}{c\varepsilon_0(1-Z)} \cdot \frac{V_0}{e_0 \sin(kh)}[Z\cos(k(y+h)) - i\sin(k(y+h))]$$

En métal parfait ($Z = 0$), on voit immédiatement que $Arg(H_z/E_x) = i = e^{i\pi/2}$: les champs E_x et H_z sont bien polarisés selon un trièdre direct, en quadrature de phase.

- A l'extérieur d'une cavité unique, le champ diffusé est décrit par une intégrale dont il difficile de simplifier l'expression sous une forme analytique abordable. Néanmoins, dans le cas du métal parfait, j'ai pu accomplir un tel travail pour tous les champs décrits à la surface horizontale du système. Les résultats sont en complet accord avec les simulations obtenues et sont présentés en Annexe, page 224.

- Le champ réfléchi par un réseau, par contre, se propage suivant des ordres diffractés discrets, bien définis, chacun d'entre eux ayant une amplitude propre R_n :

$$R_n = \frac{\beta_n - Z}{\beta_n + Z}\delta_{n0} + \frac{w}{d}[\frac{1+Z}{\beta_n + Z}] \cdot sinc(\gamma_n kw/2) \cdot \frac{iV_0}{e_0}$$

La réflectivité , correspondant au rapport de l'énergie *rayonnée* en champ lointain sur l'énergie incidente, vaut alors $\boxed{\mathcal{R} = \sum_{n\in U} \frac{\beta_n}{\beta_0}|R_n|^2}$, où U désigne l'ensemble des entiers n pour lesquels β_n est réel). En métal parfait, la réflectivité vaut systématiquement 1. En métal réel, par contre, nous pouvons aisément détecter, par les creux qui affectent le spectre de réflectivité, l'existence d'absorptions dues à des résonances électromagnétiques au niveau du système.[12].

Nous étudierons principalement des **réseaux de diffraction d'ordre 0**, *i.e.* dont la période $d < \lambda$: seul le rayon spéculaire est propagatif et $\mathcal{R} = |R_0|^2$.

[11] par exemple, pour l'or, à $\lambda = 5\mu$m : $Z = 0.004 - i0.032$.

[12] Ne jetons donc pas l'anathème sur l'inéluctable et récurrente absorption des métaux qui, si elle limite l'amplitude des résonances, les *rend* au moins détectables en champ lointain...

3.4 Simulations numériques

Ce qui nous intéresse, dans l'étude de la réponse optique d'une surface métallique comportant des rainures, c'est, outre l'identification des résonances électromagnétiques éventuelles, la prédiction non seulement des fréquences auxquelles ces dernières se produisent, mais aussi des exaltations du champ qui les accompagnent. L'étude analytique, rendue possible grâce à l'approximation unimodale, a l'ambition de répondre à ces objectifs. Les phénomènes physiques dont il est ici question sont déjà bien connus, mais les analyses "à la main" présentées dans la littérature scientifique, sont éparses et ne fournissent pas de formules à la fois simples et précises permettant d'appréhender *rapidement* le comportement du système, autant sur le plan qualitatif que quantitatif. La compréhension globale des résonances élémentaires permettra d'aborder plus sereinement les extensions à des géométries plus complexes (Partie II).

N.B. : dans tous les spectres de réponse présentés dans ce rapport, les grandeurs sont normalisées (sans dimension). Le champ magnétique incident H_0 étant de module 1, H_z est automatiquement normé. Le champ électrique, par contre, a deux composantes E_x et E_y : on les normera toutes les 2 par le champ électrique *total* incident $E_0 = (c\varepsilon_0)^{-1}$.

3.4.1 Cavité sub-longueur d'onde : résonateur de Fabry-Perot

Dans cette section détaillée, nous étudions la réaction électromagnétique d'une cavité sub-longueur d'onde unique (fermée au fond), gravée dans de l'or, sous l'incidence d'une onde monochromatique infra-rouge (polarisée TM), dans les conditions d'application de la méthode modale restreinte. On s'intéresse aux conditions éventuelles pour lesquelles la lumière se concentre sensiblement à l'intérieur du sillon, comportement qu'on expliquera physiquement. Les simulations sont faites en métal réel, mais l'approche analytique, servant à expliquer les observations, sera traitée avec le métal parfait pour simplifier.

On peut voir, sur les spectres de la Figure 3.1, que de fortes exaltations de l'intensité $|H_z|^2$ du champ magnétique ont lieu au sein de la cavité isolée (3 rapports d'aspect w/h sont illustrés). Ces exaltations sont typiquement de l'ordre de la centaine ici, et correspondent à des résonances dont le profil spectral est lorentzien. Dans le cas de la cavité la plus profonde ($h = 1.5\mu m$), on peut observer, vers $4500cm^{-1}$, ce qui est en fait un harmonique de la résonance fondamentale située à $1374cm^{-1}$.

- A largeur $w = 300$nm, on voit que l'augmentation de la profondeur h entraîne, pour la résonance, un décalage vers les basses fréquences, et aussi un meilleur facteur de qualité.
- A profondeur $h = 1\mu m$, l'augmentation de la largeur w entraîne, pour la résonance, un décalage vers les basses fréquences, mais un moins bon facteur de qualité.

En complément de ces spectres, la cartographie du champ proche lors de la résonance,

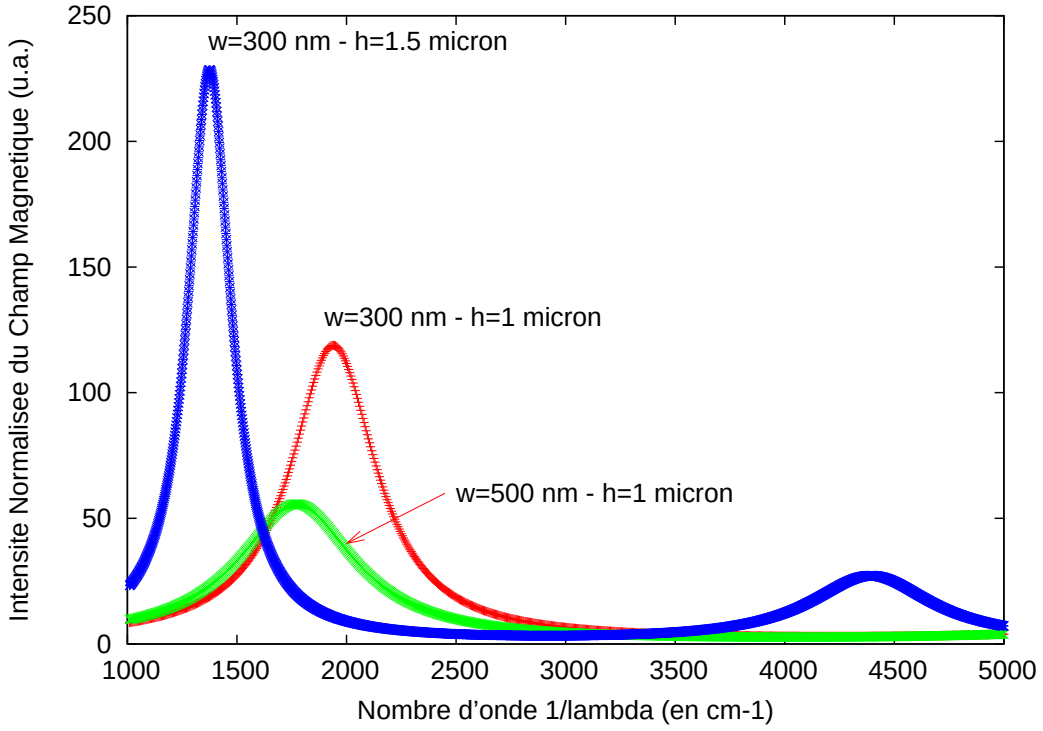


FIG. 3.1 – Spectres de l'intensité du champ magnétique (normalisé au champ incident) au sein d'un cavité unique, pour différents jeux de largeur w et de profondeur h, en incidence normale ($\theta = 0$). En terme de longueur d'onde, $\lambda \in [10\mu m, 2\mu m]$. L'intensité est calculée au fond des cavités (voir explication en page 45).

montre que le champ magnétique est localisé *dans la rainure*, et maximum au fond (Figure 3.2). Il n'y a aucune exaltation en surface (si ce n'est à l'embouchure même de la cavité).

La Figure 3.3 montre l'environnement électromagnétique de la surface lorsque la cavité ne résonne pas. On voit une distribution de faible intensité du champ de part et d'autre de l'ouverture, qui correspond à une combinaison du plasmon de surface et des ondes "photoniques" diffusées en surface. On trouvera dans les travaux de Lalanne *et al* [14] un complément d'information sur la génération des plasmons de surface à l'ouverture d'une fente sub-longueur d'onde.

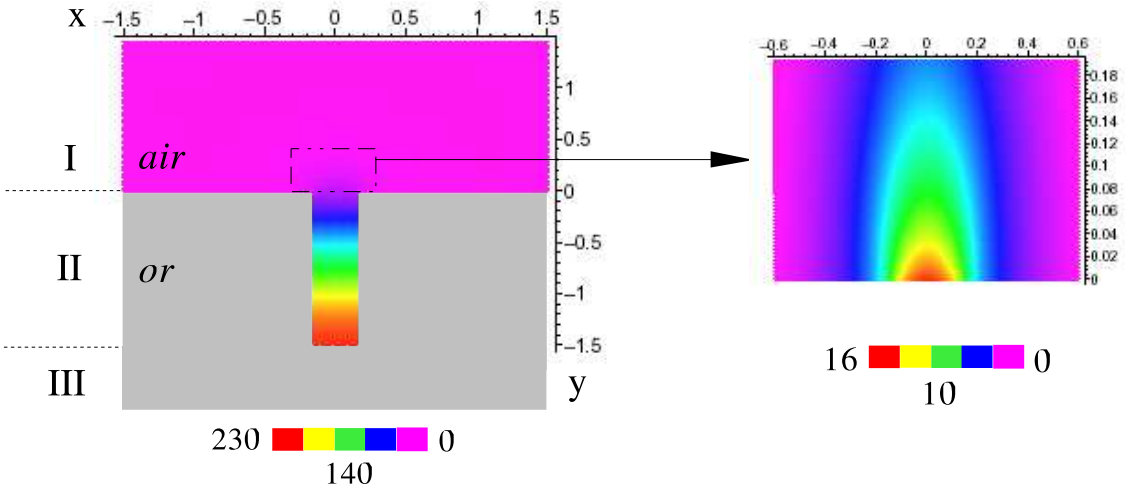


FIG. 3.2 – Distribution de l'intensité (normalisée) du champ magnétique autour d'une cavité isolée en or, paramétrée par $w = 300$nm et $h = 1.5\mu$m, à la résonance $1374cm^{-1}$ ($\lambda = 7.3\mu$m). $\theta = 0$. Echelles spatiales x et y en microns. A droite, zoom sur l'intensité du champ à la sortie de la cavité.

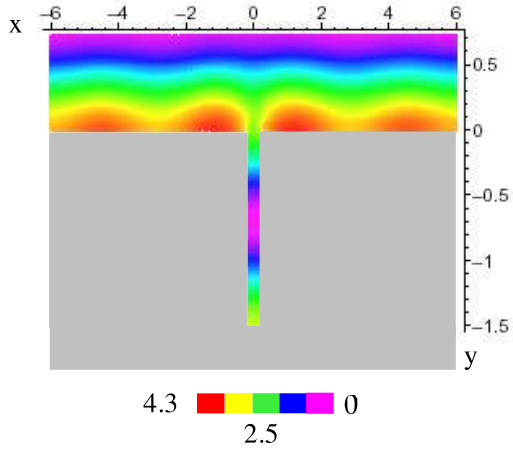


FIG. 3.3 – Distribution spatiale de l'intensité (normalisée) du champ magnétique autour d'une cavité unique en or, *hors* résonance. Les paramétres sont $w = 300$nm, $h = 1.5\mu$m et $\lambda = 3.33\mu$m ($3000cm^{-1}$). $\theta = 0$. Les échelles spatiales x et y sont en microns. On observe une distribution d'ondes surfaciques de part et d'autre de la cavité.

A) Dénominateur de l'expression du champ dans la cavité

Pour comprendre la résonance de cavité, étudions le dénominateur du coefficient A (le champ magnétique dans la fente est proportionnel à A). Considérons, pour simplifier, la cavité dans un environnement métallique parfaitement conducteur ($Z = 0$). D'après l'équation (3.4), page 41, il vient :

$$e_0 = \cot(kh) - i \cdot \frac{w}{\lambda} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{sinc^2(kwu/2)}{\sqrt{1-u^2}} du$$

Etant donné la parité de l'intégrande en la variable u, on a[13] :

$$e_0 = \cot(kh) - \frac{2w}{\lambda} \int_{1}^{+\infty} \frac{sinc^2(kwu/2)}{\sqrt{u^2-1}} du + i\frac{2w}{\lambda} \int_{0}^{1} \frac{sinc^2(kwu/2)}{\sqrt{1-u^2}} du$$

Les ondes planes telles que $u < 1$ sont rayonnées dans le demi-espace $y > 0$. Celles dont $u > 1$ sont surfaciques.

En régime sub-longueur d'onde $kw < 1$, je démontre que l'égalité ci-dessus équivaut, avec une excellente approximation, à :

$$e_0 = \cot(kh) - \frac{kw}{\pi}(3/2 - C_E^{te} - \ln(\frac{kw}{2})) - i \cdot \frac{kw}{2} \tag{3.6}$$

Où C_E^{te} est la constante d'Euler, qui vaut 0.5771.... La simplification permet d'entamer une discussion aisée.

B) Fréquence de résonance

Au premier abord, on a $kw << 1 => \cot(kh) = 0 =>$ $\boxed{\lambda = \frac{4}{2n+1}h,\ n \text{ entier} \geq 0}$

On fait donc apparaître des fréquences spécifiques traduisant la mise en place d'*ondes stationnaires*. En particulier, la résonance <u>fondamentale</u> de cavité est attendue aux alentours de $\boxed{\lambda = 4h}$. La distribution spatiale des champs H_z et E_x est également facile à visualiser, d'après les formules données en page 41 (prendre $Z = 0$ pour l'exemple). On en déduit qu'à la résonance fondamentale :

1) *Le champ magnétique est maximum* <u>*au fond*</u> *des cavités* ($y = -h$), et très faible en bordure.

2) *Le champ électrique* E_x *est maximum* <u>*à l'embouchure*</u> *des fentes* ($y = 0$), et décroît pour s'annuler pratiquement au fond[14].

[13] Noter qu'il n'y a aucun problème de convergence des intégrales. Le recours aux critères de base de l'intégrabilité permet de s'en convaincre rapidement.

[14] Pour une fente symétrique en transmission (région III vide), les conditions de résonance sont $\lambda = \frac{2}{n}h$, $n \geq 0$. A la résonance fondamentale, le champ magnétique est maximum au *milieu* de la cavité ($y = -h/2$) et le champ électrique maximum aux *deux* embouchures de la fente. Si la région III est remplie d'un diélectrique d'indice optique $n_3 > 1$, la résonance sera décalée vers les basses fréquences [7].

Autrement dit, les ventres et les noeuds des champs H_z et E_x (supportés dans la cavité par le seul mode guidé) sont inversés[15]. Ce sera vrai pour un réseau périodique de cavités (si la résonance n'est pas couplée à un autre mode, tel qu'un plasmon de surface horizontal). Le comportement du champ, suivant y, rappelle fortement celui qu'on obtient dans le problème mécanique d'une corde vibrante de longueur h ayant une extrêmité fixée. Le parallèle est plus fort avec la sélectivité résonante d'un interféromètre de Fabry-Perot. Le lecteur ne sera donc pas surpris que, dans la suite du rapport, les résonances du mode guide d'onde, dites aussi résonances de cavité, soient appelées [16] [15] ***résonances de type Fabry-Perot***.

En toute rigueur, e_0 est une quantité complexe : le pôle du coefficient A est donc complexe. Les résonances sont plus précisément obtenues lorsque $\Re(e_0) = 0$, ce qui implique $kh = Arc\cot[\frac{kw}{\pi}(3/2 - C_E - \ln(kw/2))]$. C'est toujours sur la détermination principale de $Arc\cot$ que se trouve la résonance *fondamentale*, dont la fréquence propre sera dès lors notée k_0 :

$$k_0 h = \pi/2 - \arctan[\frac{k_0 w}{\pi}(3/2 - C_E - \ln(k_0 w/2))]$$

On obtient ainsi une *formule paramétrique précise du lieu où apparaîtra la résonance du guide d'onde* : $\boxed{k_0 \approx \frac{\pi}{2h} - \frac{w}{2h^2} \cdot (3/2 - C_E - \ln(\pi w/4h))}$

Il existe donc, par rapport à la fréquence Fabry-Perot idéale $k = \frac{\pi}{2h}$, un décalage de la résonance, d'ordre géométrique, vers les basses fréquences.

A.N. : $w = 300$nm et $h = 1.5\mu$m. La formule paramétrique donne $1/\lambda_0 = 1370cm^{-1}$. La simulation (spectre 3.1) donne $1/\lambda_0 = 1374cm^{-1}$. L'accord est d'autant meilleur pour les petits ratios w/h.

C) Analogie au comportement d'un oscillateur amorti

En recourant au développement limité $cot(x + \delta x) \approx \cot(x) - \frac{1}{\sin^2 x}\delta x$, autour de la résonance fondamentale $k_0 h \approx \pi/2$, on peut récrire très simplement le coefficient A du champ dans la cavité, en terme de pulsation, sous la forme suivante :

$$A \approx \frac{ic/h}{(\omega_0 - \omega - i\gamma_0/2)} \quad \text{avec} \quad \omega_0 = ck_0, \quad \gamma_0 \approx \frac{\pi w c}{2h^2}$$

Le métal est considéré parfait dans l'étude analytique. On a la réponse d'un *oscillateur amorti*, dont le spectre de résonance affiche un profil *lorentzien* : c'est une résonance forcée. Le *facteur de qualité* Q étant donné par le rapport $\frac{\omega_0}{\gamma_0} = \frac{2h}{\pi w}$. Cette analyse concorde entièrement avec les simulations Figure 3.1. Soulignons que *l'amortissement γ_0 provient de la contribution des ondes rayonnées ($|k_x| < k$), et correspond donc aux pertes par radiation* (auxquelles il faudra ajouter les pertes par absorption,

[15] E_y n'est intense qu'autour de chaque coin métallique de l'embouchure de cavité, coins où les charges électriques vont naturellement s'accumuler lors de la résonance (rappelons-nous la section 2.10, outre les travaux présentés en Annexe sur E_y, page 224).

en métal réel). Les ondes diffusées en surface ($|k_x| > k$) n'ont d'influence que sur la valeur prise par la fréquence propre ω_0.

Donc, pour un bon métal, en régime sub-λ, $\boxed{Q \sim \frac{h}{w}}$: *un rapport d'aspect important conduit à une meilleure résonance du guide d'onde*[16]. On voit ici l'importance du caractère sub-longueur d'onde dans l'exaltation locale du champ électromagnétique. Ce phénomène de résonance peut d'ailleurs être interprété par une analogie aux miroirs plans (voir le commentaire en Annexe, page 228).

Le mode Fabry-Perot n'est pas dispersif, dans le sens où le dénominateur de A (*i.e* e_0) est indépendant de l'angle d'incidence θ, chose qui n'est pas vrai, en général, quand on passe au réseau périodique. Cela dit, la résonance de cavité s'effondre en incidence rasante, du simple fait que l'énergie incidente est totalement absorbée par la surface métallique réelle (il suffit de voir, en page 40, que le terme d'excitation $V_0 = 0$ quand $\theta = \pi/2$).

D) Facteur d'exaltation

Les grandeurs pertinentes à étudier pour quantifier l'exaltation possible de la lumière, lors d'une résonance de type "Fabry-Perot", seront donc les modules des champs aux points où ils sont les plus forts.

$$H_z|_{y=-h} = \frac{1}{1-Z} \cdot \frac{V_0}{e_0 \sin(kh)} \quad \approx \frac{4}{kw} \text{ à la résonance } kh \approx \pi/2$$

Le champ magnétique incident étant de module 1, la normalisation de H_z est automatique.

A.N. : prenant l'exemple d'une cavité avec $w = 300$nm et $h = 1.5\mu$m, on trouve $|H_z|^2 = 238$. Le spectre de réponse en Figure 3.1 est en très bon accord.

Quant au champ électrique, on introduira ce qu'il est commode d'appeller **facteur d'exaltation**, abrégé en **EF** (*Enhancement Factor*), lequel refléte la quantité d'énergie emmagazinée aux embouchures de cavités ($y = 0$), et défini par l'intensité normalisée $|\frac{E_x}{E_0}|^2$, où E_0 désigne le champ électrique total incident, dont le module vaut simplement $|E_0| = (c\varepsilon_0)^{-1}$.

$$EF = |\frac{1 + iZ\cot(kh)}{(1-Z)} \cdot \frac{V_0}{e_0}|^2$$

Dans des géométries sub-longueur d'onde standards, les intensités de H_z et E_x sont presque égales. En revanche, quand on tend vers de très petites géométries ($w <<< \lambda$), C'est EF qui prédomine largement (on le verra au Chapitre 8).

[16]Pour les harmoniques supérieurs, on aurait $\gamma = \frac{(2n+1)\pi w}{4h^2}$, soit un amortissement croissant avec leur ordre n. Idem pour leur décalage $k - k_{FP}$. On peut dire qu'un fondamental $n = 0$, pour une profondeur h_0 donnée, résonne avec une qualité comparable à celle d'un harmonique $n > 0$ obtenu à la profondeur $h = \sqrt{2n+1}h_0$.

E) Effet d'ouverture / Effet des plasmons couplés

On a vu plus haut dans le B) que la fréquence fondamentale était donnée par $k_0 \approx \frac{\pi}{2h} - O(kw)$. Il y a toujours un *shift* vers les basses fréquences par rapport à la fréquence "idéale" d'une résonance Fabry-Perot ($kh = \pi/2$). Ce décalage est dû à un "effet d'ouverture", comme l'avait déjà annoncé Takakura [16] dans son étude d'une fente en transmission en métal parfait. A cet effet purement géométrique, il faut ajouter l'influence du caractère réel de la constante diélectrique du métal (ε finie et complexe), ce qu'on aborde un peu plus loin.
Si l'effet d'ouverture est d'autant moins fort que le rapport d'aspect w/h est petit, réfléchissons alors à ce qu'il se passe si, à profondeur fixée, w tend vers zéro. On décale alors automatiquement la résonance vers les hautes fréquences, pour atteindre la fréquence (indépassable) de Fabry-Perot. De plus, l'exaltation locale du champ magnétique semble diverger lorsqu'on tend vers les *très petits* kw, d'après le paragraphe précédent. Ce comportement est correct seulement jusqu'à un certain stade.

En vérité, dans le cas ***exact d'un métal réel***, la tendance est complètement différente : en rapprochant excessivement les 2 parois verticales de la cavité, *le couplage, à travers l'air, des plasmons de surface du métal devient tellement important qu'il l'emporte sur l'effet géométrique d'ouverture.* Ce couplage modifie les constantes de propagation de l'onde guidée, ce qui fait qu'on a un *indice effectif rendant le milieu interne à la cavité hautement propagatif le long des parois.* Cela va donc avoir pour effet de *retourner le sens du shift* vers les basses fréquences.

L'explication physique détaillée de ce phénomène est réservée à la dernière partie de la thèse (page 192 et au-delà), dans laquelle je démontre que l'aspect FINI de la constante diélectrique du métal implique $\boxed{k \approx \frac{\pi}{2h} - \frac{1}{w\sqrt{|\varepsilon|}}}$ quand $kw \to 0$. Cette formule est fondamentale. Elle montre qu'on s'écarte irrémédiablement de la fréquence idéale de Fabry-Perot, au fur et à mesure que w diminue. Cet effet a d'ailleurs été *prouvé expérimentalement* [17] dans le domaine des micro-ondes, en 2004, pour un système à fente en aluminium. La formule encadrée ci-dessus montre qu'à l'extrême, la fréquence de résonance tombe à 0, alors qu'elle tendrait vers $\frac{\pi}{2h}$ en métal parfait ! Il s'agit là d'un point de premier plan lorsqu'on abordera les phénomènes d'absorption anormale dans les gravures nanométriques.

Dans la Partie II (comme dans ce Chapitre), nous considérerons toujours des dimensions et un domaine spectral au regard desquels ce phénomène plasmonique est plutôt secondaire (quoique présent). Des fentes de relative "grande" largeur peuvent être considérées à parois parfaitement conductrices, approximation pertinente pour des cavités de plusieurs centaines de nanomètres de large, dans une matrice d'or ou d'argent soumise à un rayonnement infrarouge.

3.4.2 Réseau périodique : résonance du guide d'onde et des plasmons de surface

A) Simulations numériques

La Figure 3.4 montre, à droite, le spectre de réflectivité spéculaire ($|R_0|^2$) de deux réseaux d-périodiques en Or, soumis à une lumière infrarouge arrivant en incidence normale. Les cavités de chacun d'eux sont de mêmes dimensions ($w << \lambda$), mais n'ont pas la même période. On distingue 2 types de résonances : la résonance de cavité Fabry-Perot (plus intense pour le réseau à grande période), et la résonance du Plasmon de Surface Horizontal (HSP), qui n'a lieu que pour le réseau à grande période dans cette gamme spectrale. Les cartographies du champ local, lors des résonances du réseau à grande période sont clairement illustrées en Figure 3.6. L'exaltation à la résonance FP est bien plus grande que celle rencontrée à la résonance HSP. Aucune de ces localisations de la lumière n'auraient eu lieu en Polarisation TE pour ce type de géométrie sub-longueur d'onde.

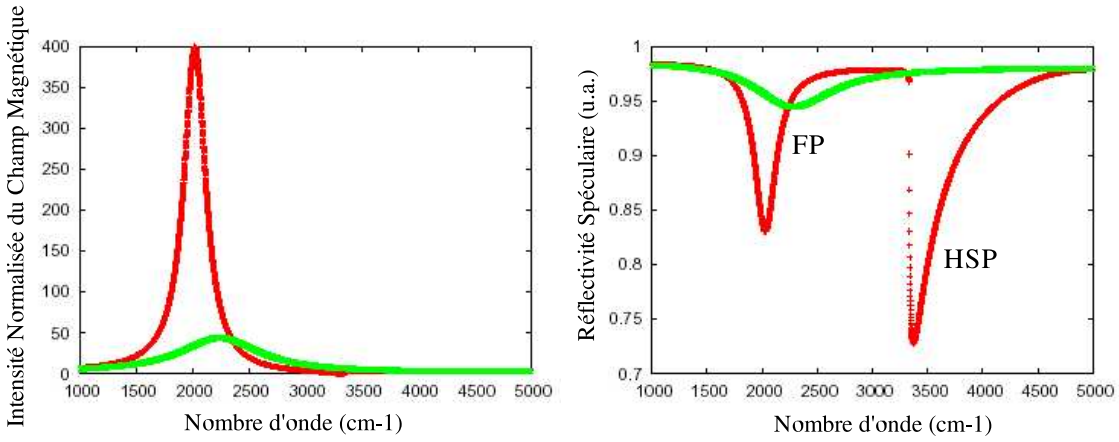


FIG. 3.4 – A gauche : spectres de l'intensité du champ magnétique (normalisé au champ incident) dans la cavité d'un réseau en or d-périodique, en incidence normale. En vert $d = 1\mu m$, en rouge $d = 3\mu m$. Les dimensions de la cavité sont $w = 0.3\mu m$ et $h = 1\mu m$. A droite : spectres de la réflectivité spéculaire (normalisée) du réseau ; en vert $d = 1\mu m$, en rouge $d = 3\mu m$. FP désigne la résonance type Fabry-Perot. HSP désigne l'excitation d'un plasmon de surface horizontal.

Si le mode Fabry-Perot correspond à la résonance d'ondes stationnaires se propageant dans le sens des y, au sein des cavités, les plasmons de surface correspondent plutôt à des résonances latérales, avec la mise en place d'ondes propagatives selon x cette fois, à l'extérieur du réseau.

B) Analyse des résonances pour un métal parfait

Dans la même veine que l'analyse faite pour la cavité unique, menons une étude simple pour rendre compte des grandeurs observées en Figure 3.4. Dans le cas d'un réseau d-périodique, le déterminant du coefficient A du champ dans la cavité, en métal

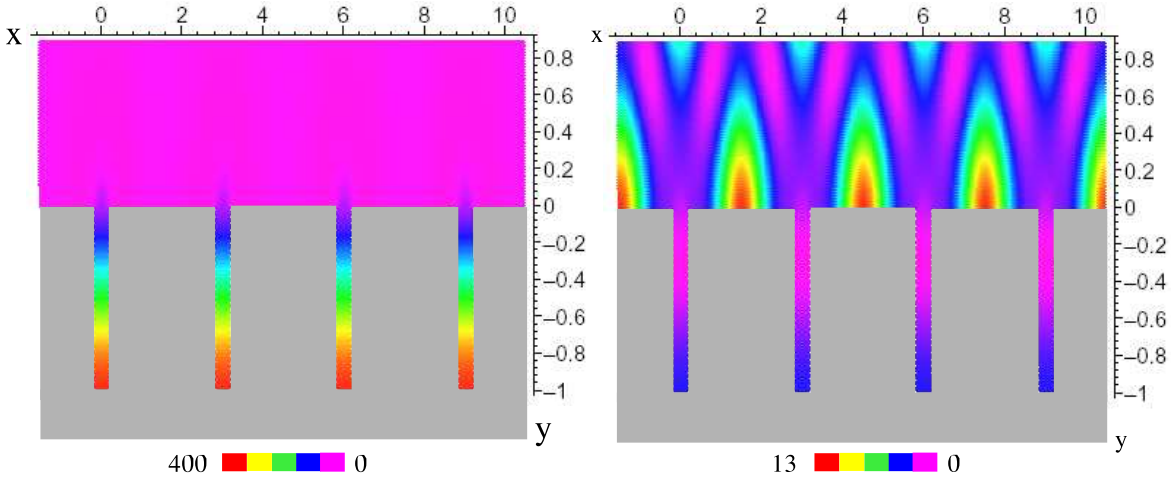


FIG. 3.5 – Cartographies de l'intensité (normalisée) du champ magnétique, sur 4 périodes du réseau en argent paramétré par $d = 3\mu$m, $w = 0.3\mu$m et $h = 1\mu$m ($\theta = 0$). A gauche : résonance de cavité Fabry-Perot ($2030cm^{-1}$). A droite : résonance du plasmon de surface horizontal ($3360cm^{-1}$). Les échelles spatiales sont en microns.

parfait, s'écrit :

$$e_0 = \cot(kh) - i \cdot \frac{w}{d} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{sinc^2(k\gamma_n w2)}{\sqrt{1-\gamma_n^2}} \tag{3.7}$$

$\gamma_n = \sin\theta + n\frac{\lambda}{d}$. *Contrairement à une cavité (ou fente) isolée, le déterminant* e_0 *dépend de l'angle d'incidence* θ *dans le réseau* (conséquence de la pseudo-périodicité).

Supposons la période nettement sub-longueur d'onde : $\lambda >> d > w$. On a donc affaire à un réseau de diffraction d'ordre 0 (tel que $|\gamma_n| > 1$ pour $n \neq 0$). En incidence *normale*, la somme se simplifie alors comme suit :

$$e_0 = \cot(kh) - \frac{kw}{\pi}(3/2 - \ln(\frac{2\pi w}{d})) - i \cdot \frac{w}{d} \tag{3.8}$$

La formule provient de [4]. Elle est proche de celle que j'ai obtenue pour la cavité isolée[17]. Nous avons encore une fois des résonances de type Fabry-Perot pour $\lambda_{FP} \approx \frac{4}{2n+1}h$, $n \geq 0$, avec, là aussi, un décalage vers les basses fréquences par rapport à la fréquence idéale. La formule paramétrique donnant le lieu où apparaîtra la résonance fondamentale est : $\boxed{k_0 \approx \frac{\pi}{2h} - \frac{w}{2h^2} \cdot (3/2 - \ln(\frac{2\pi w}{d}))}$. Si la période $d \approx \lambda$, la formule paramétrique n'est pas une bonne approximation.

Le champ magnétique, au fond des cavités, est donné (voir page 41), pour un métal parfait en incidence normale, par $H_z|_{y=-h} = \frac{2}{e_0 \sin(kh)}$. Par conséquent, à la résonance

[17] On serait plus précis encore en prenant $3/2 - \ln(2\pi w/d) + F(\lambda/d)$, où $F(\lambda/d)$ est un facteur correctif paliant une trop grande approximation du terme d'ordre $n = 1$ de la somme discrète, utile si on atteint le cas d'une période d voisine de λ ; il vaut $\frac{(\lambda/d)}{\sqrt{(\lambda/d)^2-1}} - 1$.

FP fondamentale ($kh \approx \pi/2$), l'exaltation de l'intensité du champ vaut $\boxed{|H_z(y=-h)|^2 \approx \frac{4}{(w/d)^2}}$ (champ normalisé au champ incident).

A.N. : $w = 0.3\mu$m, $h = 1\mu$m et $d = 3\mu$m. On trouve une fréquence de résonance de $2030cm^{-1}$, et $|H_z(y=-h)|^2 \approx 400$, en parfait accord avec la simulation en Figure 3.4.

L'analyse de $\Im(e_0)$, qui borne l'amplitude de la résonance Fabry-Perot, montre donc que l'amortissement (ou la largeur spectrale) est donné par $\boxed{w/d}$ dans un réseau (avec $d < \lambda$), tandis qu'il était donné par $kw/2$ pour une fente unique. A largeur w fixée, c'est donc d qui est le facteur limitant pour le réseau (rapport purement géométrique), et λ pour la fente isolée (rapport dynamique). Par conséquent, ***un réseau a une meilleure résonance Fabry-Perot qu'une fente isolée, quand*** $\boxed{d > (\lambda/\pi)}$ (du moins en métal parfait). La comparaison des spectres d'intensité des Figures 3.4 et 3.1 pour la cavité ($w = 0.3\mu, h = 1\mu$) va tout à fait dans ce sens.

C) Analyse des résonances pour un métal réel

Le passage au métal REEL ($Z \neq 0$), maintenant, peut faire intervenir un nouveau type de résonance : les plasmons de surface horizontaux (HSP). En regardant le déterminant des coefficients de réflexion R_n, page 41, on voit que ces résonances apparaissent lorsque $\boxed{\beta_n + Z \approx 0}$, c'est-à-dire pour des $|\gamma_n| > 1$ (β_n imaginaire)[18]. On a bien des ondes évanescentes suivant y, localisant l'énergie en surface. Les HSP apparaissent ainsi à une fréquence *juste inférieure* à l'apparition d'un nouvel ordre de diffraction ($\beta_n = 0$).

En fait, la condition $\beta_n + Z = 0$ n'est jamais vraiment atteinte, puisque Z est un nombre complexe. En ce sens, comme pour la résonance FP, on a une résonance *forcée*, ici du plasmon horizontal. C'est essentiellement l'absorption du métal qui va limiter la résonance. Cependant, le confinement plus "étalé" du champ en surface ne peut conduire à des exaltations locales plus intenses qu'au sein des cavités sub-longueur d'onde à la résonance FP (pour notre choix de géométrie dans l'infrarouge) [19].

Sous l'excitation d'une onde lumineuse propagative (polarisée TM), arrivant avec un angle d'incidence θ, la formule de dispersion des plasmons d'une surface métallique périodiquement structurée, peut être approximée à partir de celle d'une surface plane, moyennant un pseudo-moment $n\frac{2\pi}{d}$ (n entier relatif), comme suit :

[18]En métal parfait (Z=0), la condition $\beta_n = 0$ (ou $\gamma_n = \pm 1$) n'implique pas une résonance mais l'existence d'un ordre diffracté propagatif tout le long de la surface du réseau (anamalie de Wood) : l'onde électromagnétique n'a pas de dépendance en y, donc il n'y a pas d'énergie localisée en surface. A la limite où $Z \to 0$, les ondes diffractées en surface et les ondes plasmoniques *se confondent* (condition commune $\gamma_n = \pm 1$), mais le plasmon n'a plus d'existence physique puisqu'il n'y a aucune oscillation de charge dans un métal parfait.

[19]La condition $\beta_n + Z = 0$ ne conduit pas à la relation de dispersion des plasmons de surface (mais à son inverse) du fait qu'on a usé d'un raccord par l'impédance de surface approximée laquelle ne prend pas vraiment en compte les ondes de grands k_x. Si $|\varepsilon_m|$ diminue fortement (aux hautes fréquences), on voit que l'approximation par l'impédance de surface ne fonctionne plus très bien.

$$k\sin\theta + n\frac{2\pi}{d} = k\sqrt{\frac{\varepsilon_m}{\varepsilon_m+1}} => (\frac{\gamma_n}{\beta_n})^2 = \varepsilon_m(\omega)$$

Le plasmon d'ordre n apparaît alors quand $\boxed{\lambda = (d/n)\cdot(\sqrt{\varepsilon_m/(\varepsilon_m+1)} \pm \sin\theta)}$

Un réseau de diffraction d'ordre 0 ne peut supporter que le plasmon $n = 1$. Dans l'exemple $d = 3\mu$m de la Figure 3.4, le creux apparaissant vers $3360cm^{-1}$ (soit $\lambda \approx 3\mu m$) s'identifie bien à l'excitation du plasmon $n = 1$.

Si l'angle θ n'est pas nul, le plasmon se scinde en 2 modes, comme le montre la formule, l'un vers une plus haute fréquence (appelé $+n$), l'autre vers une plus basse fréquence (appelé $-n$). Par conséquent, si λ et d sont fixés, seul l'angle θ peut abaisser la fréquence de résonance des HSP.

Cependant, en présence de cavités profondes, les résonances FP et HSP peuvent *se coupler* si leurs fréquences d'excitation sont voisines (ne pas oublier aussi les harmoniques supérieures). Les modes peuvent de la sorte "s'hybrider", se repousser et se perturber l'un à la défaveur de l'autre. La formule de dispersion ci-dessus n'est évidemment plus utilisable dans le cas où la cavité occupe un volume important dans la période d, mais également lorsque le mode HSP est sensiblement couplé au mode Fabry-Perot (par exemple lorsque $4h \sim d$). Pour avoir alors une vision globale des comportements (nouveaux décalages fréquentiels, localisations de la lumière plus complexes), il faut analyser les *courbes de dispersion des modes excités* (*i.e.* les lieux des minima observés sur le spectre de la réflectivité, pour tous les angles θ). De nombreuses études théoriques, et expérimentales, ont été menées à ce sujet (on peut citer [18] et [7]).

D) Un choix optimal de paramètres

Le facteur limitant la résonance FP du réseau est w/d, on l'a vu. On a donc intérêt à prendre une période d la plus grande possible, *tout en restant un peu inférieure* à la longueur d'onde où apparaîtra effectivement l'exaltation. En effet, la résonance ne peut pas être meilleure si un autre ordre de diffraction devient propagatif (*i.e.* si $d \leq \lambda$), en plus du rayon spéculaire permanent, car $\Im(e_0)$ augmenterait. Ce nouvel ordre contribuerait à des pertes radiatives supplémentaires.

Fort de cette analyse, prenons par exemple le jeu de paramètres $\underline{w = 0.3\mu m}$, et $\underline{h = 1.5\mu m}$; on attend une résonance FP un peu au-dessus de $\lambda \approx 6\mu m$ (un peu inférieure à $1666cm^{-1}$, en terme de fréquence).

- Avec une période $\underline{d = 6\mu m}$, on trouve alors, en incidence normale, une exaltation de l'intensité du champ magnétique de **1454** au fond des cavités, à la longueur d'onde d'excitation $\lambda = 7.4\mu m$ ($1352cm^{-1}$). La largeur spectrale de la résonance vaut $75cm^{-1}$, le HSP étant, lui, excité vers $\lambda = 5.88\mu m$ ($1700cm^{-1}$).

- Si, toujours à cette période, on diminue w de $0.3\mu m$ à $0.2\mu m$, on atteint une exaltation plus intense encore, de **2943** pour $\lambda = 7.11\mu m$ ($1405cm^{-1}$), avec une largeur spectrale de résonance valant $\approx 50cm^{-1}$.

3.5 Excitation efficace par onde évanescente

Hessel et Oliner [1] furent les premiers, en 1965, à avoir indiqué, d'une part, que les surfaces métalliques à corrugation *périodique* supportaient des ondes électromagnétiques dont les vecteurs propres étaient complexes, d'autre part que certains modes pouvaient se comporter comme des guides d'onde si la corrugation était suffisamment profonde [20]. On sait maintenant à quoi leurs propos correspondent.

Dans le cas du réseau périodique de fentes sub-longueur d'onde, on a vu que le coefficient A du champ interne aux cavités est proportionnel à $1/\sin(kh)e_0$, avec e_0 donné par la relation (3.7) de la page 50.

La largeur spectrale de la résonance Fabry-Perot est donnée par la partie réelle de e_0. Si $d << \lambda$, elle vaut, en métal parfait, $(w/d)\sqrt{1-\gamma_0^2} = (w/d)\beta_0$. Du fait de l'incidence par onde plane propagative, $\gamma_0 = \sin\theta$ et $\beta_0 = \cos\theta$: le terme d'amortissement existe toujours. Ce dernier est directement *lié à la nature de l'onde excitatrice* : on a en permanence un *ordre réfléchi propagatif*, à savoir le rayon spéculaire, *via* lequel l'énergie envoyée sur le système peut "s'échapper" (sous forme de rayonnement).

Le rapport sub-longueur d'onde $\frac{w}{d}$ étant réel, le seul moyen d'éliminer complètement l'amortissement est donc de rendre β_0 imaginaire pur, *i.e.* $|\gamma_0| > 1$, donc d'***exciter le système par une onde plane évanescente*** suivant y (avec $k_{//} > k$ et $k_\perp \in \mathcal{C}$). Dans ces conditions, tous les ordres diffractés sont confinés en surface : *il ne peut plus y avoir de fuites radiatives*, et les résonances du réseau sont seulement limitées par l'*absorption* du matériau. On doit alors observer, lors des résonances, de très fines largeurs spectrales et trouver d'importantes quantités d'énergie emmagazinées dans la structure...

Mathématiquement parlant, si le mode est mieux excité avec un β_0 imaginaire, cela signifie qu'il a un vecteur propre *complexe*. On rejoint ce qui avait été annoncé par Hessel et Oliner. Les courbes de dispersion complexes des modes de résonance, dans les réseaux en transmission, ont d'ailleurs été étudiées dans [18]. Ce n'est pas le mode de cavité en soi qui a un vecteur complexe (puisque c'est un guide d'onde) mais le mode de la structure prise dans son ensemble (ça ne marche pas pour une cavité isolée, j'en explique la raison plus loin).

En pratique, l'Excitation par Onde Evanescente (EOE) peut s'effectuer avec l'aide d'un prisme, placé un peu au-dessus du réseau, dans une configuration de réflexion totale frustrée ou *ATR* (*Attenuated Total Reflexion*) décrite par A.Otto [19]. De la sorte, le système prisme-réseau fait office d'un résonateur Fabry-Perot presque parfait[21].

[20] Considérant une interface métallique de profil unidimensionnel quelconque mais périodique, les auteurs ont recouru à une impédance de surface (périodique), décomposée en série de Fourier, et traité alors le problème d'un point de vue "modal" (au sens de Fourier).

[21] Notons que si $\lambda >> d$, on n'excite pas de plasmons de surface horizontaux (à moins de se trouver dans la zone fréquentielle ω_{sp}, ce qui n'est jamais le cas ici).

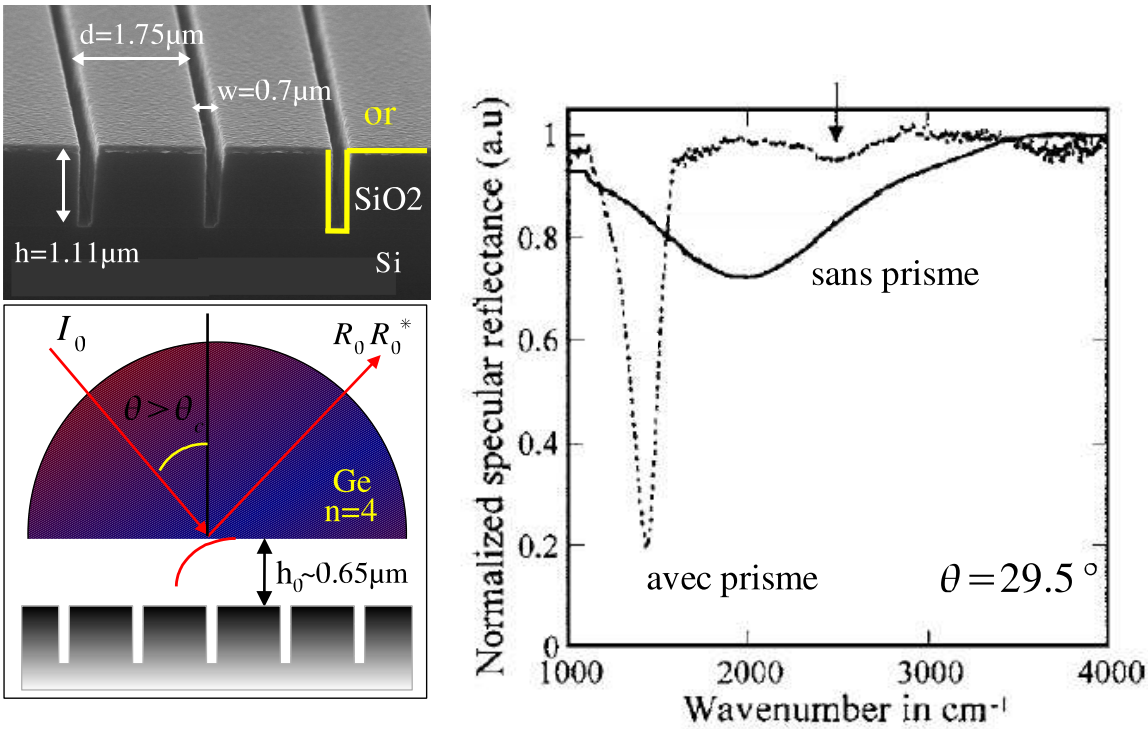


FIG. 3.6 – Excitation efficace des modes de cavité d'un réseau métallique lamellaire, par une onde évanescente polarisée TM [8]. *A gauche :* paramètres de l'échantillon et image obtenue par microscopie électronique, et schéma de la configuration ATR employant un prisme en germanium d'indice optique $n = 4$. Dans ce cas $\gamma_0 = n \sin\theta$, où l'angle d'incidence θ est supérieur à l'angle critique $\theta_c = 14.5^o$: l'onde incidente propagative devient évanescente sous le prisme. *A droite :* spectres **expérimentaux** de la réflectivité spéculaire normalisée, obtenus sans prisme et avec le prisme (placé à environ $0.65\mu m$ du réseau). La comparaison des creux de réflectivité montre que le mode Fabry-Perot fondamental est bien mieux excité en ATR, la largeur de résonance est alors réduite d'un facteur 6. La petite flèche désigne l'excitation du premier plasmon de surface horizontal (voir les courbes de dispersion des modes dans [8]). Il existe toujours un jeu de paramètres (θ, h_0) optimal pour exciter le système par ce procédé (cette recherche n'a pas fait l'objet de publication). La théorie donne $\theta = 20^o$ et $h_0 = 2\mu m$. L'intensité de l'onde évanescente est insuffisante pour exciter le réseau si h_0 ou θ sont trop grands.

Nous avons publié deux articles sur l'EOE, démontrant théoriquement [20] la possibilité d'obtenir une transmission résonante à haut facteur de qualité à travers un réseau de fentes sub-longueur d'onde, et prouvant expérimentalement [8] une excitation efficace du mode guide d'onde dans un réseau de cavités fermées, ce qu'illustre la Figure 3.5. Comme il s'agit d'un travail d'équipe commencé un peu avant mon arrivée en thèse et auquel j'ai participé modérément (plutôt du côté expérimental d'ailleurs), je ne m'étalerai pas davantage sur le sujet dans ce rapport, la priorité allant aux travaux personnels. Je souligne quand même l'idée en ajoutant quelques compléments succints.

• En toute rigueur, en métal réel, le terme qui borne l'amplitude des résonances de cavité est $(w/d)(\beta_0 + Z)$ où Z est l'impédance de surface. Comme Z est un nombre complexe, le vrai mode propre du réseau ne peut pas être excité par une onde plane évanescente comme celle obtenue en ATR. Pour arriver à éliminer totalement l'amor-

tissement, il faudrait exciter le système, non pas avec une onde ayant un vecteur d'onde $\vec{k}$ complexe à pulsation ω réelle, mais avec une onde ayant une *fréquence ω complexe* (ce qui implique aussi $\vec{k}$ réel)[22]. L'excitation la plus efficace devrait être donc obtenue par des impulsions lumineuses ou des "rampes" d'excitation (finies dans le temps).

• Pour que l'EOE excite efficacement un réseau, il faut veiller à ce que λ soit *suffisamment grande devant la période d*. Par exemple, si $\gamma_0 >> 1$, la constante de propagation $\beta_{-1} = \sqrt{1-(\gamma_0 - \lambda/d)^2}$ peut devenir réelle. Il faut donc que $\lambda > (1+\gamma_0)d$ pour que *toutes* les ondes réfléchies propagatives se détruisent. Dans le cas contaire, si un β_n devenait réel (si un nouvel ordre de diffraction devient radiatif), il résulterait nécessairement de l'interférence constructive d'ondes *rayonnées* par chaque cavité. Cela montre bien que ce n'est pas parce que l'onde incidente est évanescente que les cavités ne rayonnent pas : il faut aussi que la périodicité soit suffisamment petite, pour que s'annihile la *résultante* de leur rayonnement. Le réseau baigne alors dans un environnement d'ondes évanescentes, que l'on peut éventuellement reconvertir en ondes propagatives par le procédé inverse à l'ATR.

• En l'absence de périodicité, l'excitation d'une cavité isolée (ou de n fentes) par une onde plane évanescente n'améliore pas outre mesure la résonance Fabry-Perot (j'en ai fait la simulation). En effet, *il n'y a plus de rayon diffracté d'ordre 0 via lequel s'effectue toutes les pertes radiatives, et sur lequel on peut jouer* (c'est toute la différence), mais plutôt un lobe de rayonnement, non directionnel, impossible à "tuer" par le procédé ATR (ou assimilé). Une solution au problème est évidemment de corruguer périodiquement la surface métallique, de part et d'autre de l'ouverture sub-longueur d'onde, comme l'ont fait Garcia-Vidal *et al* [21], puis d'exciter le système dans la configuration prismatique.

[22]Comme $|\vec{k}| = \omega/c$, on peut avoir $\omega \in \mathcal{R}$ et $\vec{k} \in \mathcal{C}$ (avec $k_{//} > k$), mais si $\omega \in \mathcal{C}$, alors toutes les composantes du vecteur d'onde $\vec{k}$ ne peuvent pas être réelles (le moment $k_{//}$ peut être réel tout le temps, mais pas $k_\perp$).

Bibliographie

[1] A. Hessel et A.A. Oliner, *Applied Optics* **4**, 1275 (1965). "A New Theory of Wood's Anomalies on Optical Gratings".

[2] Ph. Lalanne *et al*, *J.Opt.A : Pure Appl.Opt.* **2** (2000). "One-mode Model and Airy-like Formulae for One-Dimensional Metallic Gratings"

[3] M.B. Sobnack, W.C. Tan, N.P. Wanstall, T.W. Preist and J.R. Sambles., *Phys.Rev.Lett.* **80** 5667 (1998). "Stationnary Surface Plasmons on a Zero-Order Metal Grating"

[4] A.Wirgin and T.Lopez-Rios, *Opt.Commun.* **48**, 416 (1984) ; A.Wirgin and T.Lopez-Rios, *Solid State Communications* **52**, 197 (1984) ; A.Wirgin and A.A.Maradudin, *Progress in Surface Science*, Vol. 22(1), pp.1-99 (1986).

[5] T.Lopez-Rios *et al*, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 665 (1998). "Surface Shape Resonances in Lamellar Metallic Gratings"

[6] A. Barbara, P. Quémerais, E. Bustarret, and T. López-Ríos, *Phys.Rev.B* **66**, 161403(R) (2002). "Optical transmission through subwavelength metallic gratings"

[7] A. Barbara, P. Quémerais, E. Bustarret, T. López-Ríos, and T. Fournier, *Eur.Phys.J.D* **23**, 143 (2003). "Electromagnetic resonances of sub-wavelength rectangular metallic gratings"

[8] A. Barbara, J. Le Perchec, P. Quémerais and T. López-Ríos, *J.Appl.Phys.* **98**, 033705 (2005). "Experimental evidence of efficient cavity modes excitation in metallic gratings by attenuated total reflection"

[9] J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, 3eme edn (New York : J.Wiley and Sons Inc., 1999).

[10] Rayleigh, *Philos.Mag.* **14**, pp. 60 (1907) ; *Proc.Royal.Soc.* **79**, pp. 399-416 (1907).

[11] J.R. Suckling, A.P. Hibbins, M.J. Lockyear, T.W. Preist and J.R. Sambles. *Phys.Rev.Lett.* **92** 147401 (2004). "Finite Conductance Governs the Resonance Transmission of Thin Metal Slits at Microwave Frequencies"

[12] R.Petit, *Electromagnetic Theory of Gratings* (Ed. R.Petit, Springer, Berlin, 1980).

[13] D.Maystre, *Rigorous Vector Theories of Diffraction Gratings* (E.Wolf, Progress In Optics XXI, 1984).

[14] P.Lalanne, J.P.Hugonin et J.C. Rodier, *Phys.Rev.Lett.* **95**, 263902 (2005). " Theory of Surface Plasmon Generation at Nanoslit Apertures"

[15] S.Astilean *et al*, *Optics Communications*, **175**, 265-273 (2000). "Light transmission through metallic channels much smaller than the wavelength"

[16] Y. Takakura, *Phys.Rev.Lett.* **86**, 5601 (2001). "Optical Resonance in a Narrow Slit in a Thick Metallic Screen"

[17] J.R. Suckling, A.P. Hibbins, M.J. Lockyear, T.W. Preist and J.R. Sambles, *Phys.Rev.Lett.* **92** 147401 (2004). "Finite Conductance Governs the Resonance Transmission of Thin Metal Slits at Microwave Frequencies"

[18] S. Collin, F. Pardo, R. Teissier and J.-L. Pelouard, *J.Opt.A : Pure Appl.Opt.* **4** (2002) "Horizontal and vertical surface resonances in transmission metallic gratings" ; S.Collin *et al*, *Phys.Rev.B* **63**, 033107-1 (2001). "Strong discontinuities in the complex photonic band structure of transmission metallic gratings".

[19] A.Otto, *Zeitschrift fur Physik* **216**, 398 (1968). "Excitation of non radiative surface plasma waves in silver by method of frustrated total reflection".

[20] P. Quémerais, A. Barbara, J. Le Perchec and T. López-Ríos, *J.Appl.Phys.* **97**, 053507 (2005). "Efficient excitation of cavity resonances of subwavelength metallic gratings"

[21] F.J.Garcia-Vidal, H.J.Lezec, T.W.Ebbesen et L.Martin-Moreno, *Phys.Rev.Lett.* **90**, 213901 (2003). "Multiple Paths to Enhance Optical Transmission through a Single Subwavelength Slit".

Deuxième partie

Méthode Modale Restreinte (suite)

Chapitre 4

Contrôle de la localisation de la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde dans un système à deux fentes

4.1 Introduction

Les modalités de résonance d'une cavité de profil sub-longueur d'onde a été longuement traité dans le Chapitre précédent, dans le cas d'un bon métal. Ces bases étant posées, on peut se demander ce qu'il se passe lorsqu'on excite maintenant deux telles cavités relativement voisines ? Un nouvel aspect de la physique doit naturellement entrer en jeu, du fait, cette fois, d'un couplage électromagnétique (interférences) entre les rainures. Il y a étonnament peu d'articles, dans la littérature scientifique, qui s'intéressent au sujet.

Récemment (en 2005), un collectif de chercheurs [1] a publié des travaux expérimentaux et théoriques sur le problème de deux fentes sub-longueur d'onde en transmission, mais uniquement en incidence normale et dans le cas de fentes séparées par une distance *grande* devant la longueur d'onde (métal en or, dans le proche infra-rouge). Les auteurs de l'article en question ont revisité, d'une certaine manière, l'expérience d'Young, en montrant que la transmission totale pouvait être modulée par les interférences des plasmons de surface se propageant entre les deux fentes[1].

Dans ce chapitre, nous nous proposons d'étudier théoriquement un système de deux *gravures* rectangulaires profondes (fermées au fond), de largeur w sub-longueur d'onde, identiques et parallèles, séparées d'une distance d, et soumises à une lumière incidente polarisée TM, comme l'indique la Figure 4.1. L'étude sera menée pour une distance de séparation et un angle d'incidence *a priori* quelconques.

Nous nous intéressons moins aux propriétés en champ lontain qu'aux propriétés en champ proche du système (localisations de la lumière, nature des résonances électromagnétiques, etc.), et nous nous focaliserons surtout sur le cas où les cavités sont

[1]En fait, c'est l'*excitation* du mode guide d'onde de chaque fente, qui est modulée par les interférences des plasmons à la surface. En métal parfait ou en polarisation TE, de telles modulations n'apparaissent pas ou peu, c'est-à-dire que les ondes surfaciques de type photoniques ont peu de poids.

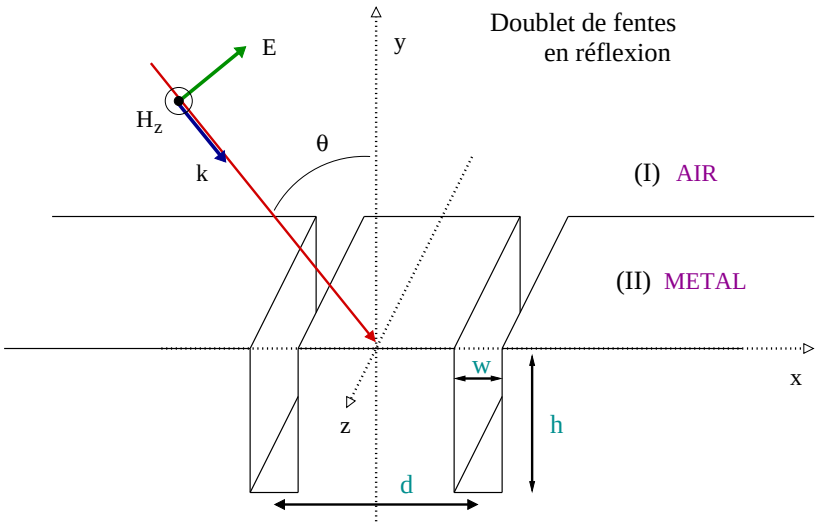


FIG. 4.1 – Schéma annoté du doublet de fentes sub-longueur d'onde, excité par une onde plane propagative polarisée TM. Le couplage en champ proche correspondra à la configuration $d << \lambda$.

séparées d'une distance très sub-longueur d'onde ($w < d << \lambda$). Nous verrons que, du fait de leur forte proximité (et de leur nature métallique), les gravures présentent deux états résonants dont les propriétés optiques respectives sont très différentes. L'un d'eux conduira notamment à des amplifications locales du champ de plusieurs milliers par rapport au champ incident, un phénomène de *hot spot* (point chaud) qui pourrait servir à la spectroscopie de molécules piégées dans de très petites cavités. Il peut également y avoir un lien important avec les mécanismes en jeu dans l'exaltation de la diffusion Raman (associée en grande partie à des résonances extrêmes supportées par les modes plasmons d'une surface rugueuse). La capacité de contrôler de telles amplifications constitue donc un enjeu non négligeable.

Nous allons d'abord dégager un ensemble de phénomènes fondamentaux, parfois nouveaux, qui seront caractérisés en détail grâce à l'analyse, et expliqués par une analogie à l'interaction dipolaire (voisine de celle décrite dans [2] au sujet d'une paire de nano-pilliers métalliques). En dernière partie du Chapitre, nous proposerons un moyen de contrôler efficacement la localisation du champ à l'échelle du système métallique sub-longueur d'onde (travaux qui ont d'ailleurs fait l'objet d'une publication récente [3]). La technique présentée peut déboucher sur d'éventuelles applications en opto-électronique.

4.2 Mise en équations et simulations

Le système de deux rainures sub-longueur d'onde sera traité, comme dans le Chapitre 3, dans le cadre de la méthode modale restreinte ($\Re(\varepsilon_m(\omega)) << 0$), en polarisation

TM. Le champ interne à chaque cavité sera décrit uniquement par le mode fondamental qui joue un rôle de guide d'onde. Les parois verticales étant, encore une fois, considérées parfaitement réflectrices, ceci présuppose toute absence d'interaction entre les champs de chaque cavité *à travers* le métal. Le couplage entre les deux résonateurs métalliques ne s'effectue que par l'intermédiaire du champ électromagnétique diffusé à l'extérieur du système. Le caractère réel du métal est pris en compte *via* l'impédance de surface, au niveau des interfaces horizontales. Ces conditions étant rappelées, nous allons résoudre le problème électromagnétique dans tout l'espace et mettre en exergue les modes propres du système à deux fentes. Des simulations numériques suivront.

4.2.1 Expression des champs, raccords et résolution

A) Expression générale des champs

Dans la région (I) (voir Figure 4.1), le champ magnétique est la somme de l'onde plane incidente, arrivant avec un angle θ, et du champ réfléchi par la surface, diffusé *a priori* dans toutes les directions du demi-espace $y \geq 0$:

$$H_z^{(I)}(x,y) = e^{ik(\sin\theta x - \cos\theta y)} + \int_{-\infty}^{+\infty} R(Q) e^{i(Qx+qy)} dQ$$

où $q = \sqrt{k^2 - Q^2}$. La distribution continue d'ondes planes réfléchies est pondérée par l'amplitude $\boxed{R(Q)}$, qui est en fait la réunion implicite $R_1(Q)e^{iQd/2} + R_2(Q)e^{-iQd/2}$ des champs réfléchis par chaque cavité (deux "sphères" de diffusion dans le continuum des vecteurs d'onde Q, pouvant interférer).

Dans la région (II) du couple de rainures, il nous suffit de connaître le champ magnétique à l'intérieur de chaque cavité. Ce champ s'exprime, dans le cadre de l'approximation unimodale comme suit :

$$H_z^{(II)}(x,y) = \begin{array}{l} A_1[e^{iky} + r\ e^{-iky}] \sqcap_1 (x) \\ +A_2[e^{iky} + r\ e^{-iky}] \sqcap_2 (x) \end{array} \quad \text{où} \quad \left| \begin{array}{l} \sqcap_1(x) = 1 \text{ si } x \in [-\frac{d+w}{2}, -\frac{d-w}{2}], \text{ 0 sinon} \\ \\ \sqcap_2(x) = 1 \text{ si } x \in [\frac{d-w}{2}, \frac{d+w}{2}], \text{ 0 sinon} \end{array} \right.$$

$\boxed{A_1 \text{ et } A_2}$ sont les amplitudes (complexes) des champs internes aux cavités 1 et 2 respectivement. Ces coefficients sont de grande importance dans notre étude. Leur calcul permet de déterminer le champ électromagnétique dans tout l'espace du système. Enfin, $r = \frac{1+Z}{1-Z} e^{-2ikh}$ est un coefficient de réflexion, qui provient de la condition de raccord par l'impédance de surface appliquée *au fond* de chaque cavité ($y = -h$). L'impédance normalisée vaut $Z = 1\sqrt{\varepsilon_m}$.

B) Equations de raccord et résolution

Les champs des régions (I) et (II) sont raccordés entre eux, en appliquant à l'interface I/II ($y = 0$) les conditions de continuités détaillées en page 36 du Chapitre précédent :

• Continuité du champ magnétique H_z, aux embouchures de chaque cavité :

$$A_1(1+r) = e^{ik\sin\theta x} + \int_{-\infty}^{+\infty} R(Q)e^{iQx}dQ \quad \forall x \in [-\tfrac{d+w}{2}, -\tfrac{d-w}{2}]$$

$$A_2(1+r) = e^{ik\sin\theta x} + \int_{-\infty}^{+\infty} R(Q)e^{iQx}dQ \quad \forall x \in [\tfrac{d-w}{2}, \tfrac{d+w}{2}]$$

• Continuité du champ électrique tangentiel E_x pour tout x, E_x étant relié à H_z par l'impédance de surface approximée au niveau des frontières métalliques :

$$(kZ-\cos\theta)e^{ik\sin\theta x}+\int_{-\infty}^{+\infty}(q+kZ)R(Q)e^{iQx}dQ = k(1+Z)(1-e^{-2ikh})(A_1\sqcap_1(x)+A_2\sqcap_2(x))$$

On obtient donc trois équations, reliant nos amplitudes inconnues A_1, A_2 et $R(Q)$, que l'on projette selon la procédure habituelle (voir Annexe, page 223). La toute dernière équation donne directement :

$$R(Q) = R_{sp}\cdot\delta(Q-k\sin\theta) + \frac{w}{\lambda}(1+Z)(1-e^{-2ikh})(e^{iQd/2}A_1 + e^{-iQd/2}A_2)\frac{sinc(Qw/2)}{q+kZ}$$

où $R_{sp} = \frac{\cos\theta - Z}{\cos\theta + Z}$ est la réflectivité spéculaire d'une surface métallique *plane*.

En injectant alors $R(Q)$ dans les deux premières équations de continuité, on est ramené à résoudre une équation matricielle $\boxed{\mathcal{M}\mathcal{A} = \mathcal{V}}$ portant uniquement sur les coefficients A_1 et A_2. $\mathcal{M}$ est une matrice carrée, caractéristique du système, et $\mathcal{V}$ est le vecteur d'excitation (nul en l'absence d'onde incidente). Cette relation matricielle s'écrit[2] :

$$\begin{bmatrix} [1+r-G(0)] & -G(-d) \\ -G(d) & [1+r-G(0)] \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} V_1 \\ V_2 \end{bmatrix}$$

$$avec \left| \begin{array}{l} V_1 = V_0 e^{-i\varphi} \\ V_2 = V_0 e^{+i\varphi} \end{array} \right. , \varphi = \frac{kd}{2}\sin(\theta) \quad \text{et} \quad V_0 = \frac{2\cos\theta}{\cos\theta + Z} sinc(\frac{kw\sin\theta}{2})$$

$$\text{Enfin : } G(x) = \frac{w}{\lambda}(1+Z)(1-e^{-2ikh})\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{sinc^2(kwu/2)}{\sqrt{1-u^2}+Z}e^{ikux}du$$

4.2.2 Modes propres et conditions de résonance

Comme la quantité $G(x)$, définie en section précédente, est paire en x, la matrice $\mathcal{M}$ est symétrique et son déterminant vaut :

$$Det = [1+r-G(0)-G(d)][1+r-G(0)+G(d)]$$

En sortant des crochets le facteur $-i(1-e^{-2ikh})$, on montre que $\mathcal{M}$ possède *2 valeurs propres*, $\boxed{2\sin(kh)e^{-ikh}e_+}$ et $\boxed{2\sin(kh)e^{-ikh}e_-}$ telles que :

[2]Pour une cavité isolée, centrée en $x = 0$, on aurait juste $[1+r-G(0)]\cdot A_0 = V_0$.

$$e_\pm = \frac{1}{1-Z}[\cot(kh) - iZ] - i(1+Z)\frac{2w}{\lambda}\int_0^{+\infty} \frac{sinc^2(kwu/2)}{\sqrt{1-u^2}+Z}[1 \pm \cos(kdu)]du$$

J'ai exposé en Annexe, page 229, une étude complète des intégrales de diffusion figurant dans $e_\pm$ (signification physique, expression analytique exacte en métal parfait, etc). Le lecteur n'est pas obligé de s'y réfèrer pour comprendre ce chapitre.

- e_+ est associée au *vecteur propre* $U_+ = \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix}$ appellé **mode (+) symétrique**

où les champs des cavités 1 et 2 sont *en phase* : $\boxed{A_1 = A_2}$.

- e_- est associée au *vecteur propre* $U_- = \begin{bmatrix} 1 \\ -1 \end{bmatrix}$ appellé **mode (-) antisymétrique**

où les champs des cavités 1 et 2 sont *en opposition de phase* : $\boxed{A_1 = -A_2}$.

Dans le cas général, le vecteur $\mathcal{A} = \begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \end{bmatrix}$ est toujours une combinaison linéaire des deux vecteurs propres du système :

$$\mathcal{A} = a_+U_+ + a_-U_- \quad \text{avec } a_+ \propto \tfrac{1}{e_+} \text{ et } a_- \propto \tfrac{1}{e_-}$$

Les coefficients A_1 et A_2 peuvent finalement s'exprimer comme suit :

$$A_{n=1,2} = [\frac{\cos(\varphi)}{e_+} + (-1)^n \frac{i\sin(\varphi)}{e_-}] \cdot \frac{e^{ikh}V_0}{2\sin(kh)} \tag{4.1}$$

Avec, on le rappelle, $\varphi = (kd\sin\theta)/2$. Notons que les valeurs propres e_+ et e_- ne dépendent *jamais* de l'angle d'incidence θ. Seuls les termes d'excitation V_1 et V_2 le sont.

L'annulation éventuelle du déterminant de A_1 ou A_2 donne les conditions de résonance des cavités. ***Deux résonances électromagnétiques*** sont donc attendues :

- quand $\Re(e_+) = 0$, à la fréquence (encore indéterminée) $k = k_+$, avec un amortissement (ou une largeur spectrale) donné par $\Im(e_+)$. Le système est alors majoritairement dans le mode U_+ : on a une résonance en phase des champs de cavité.

- quand $\Re(e_-) = 0$, à la fréquence $k = k_-$, avec un amortissement (ou une largeur spectrale) donné par $\Im(e_-)$. Le système est alors majoritairement dans le mode U_- : on a une résonance en opposition de phase des champs de cavité.[3].

[3]Faisons remarquer que les numérateurs des coefficients A_1 et A_2 contiennent des $\cos(\varphi)$ et $\sin(\varphi)$. Il y a donc un phénomène de "battement" des numérateurs en fonction de l'angle $\varphi = (kd\sin\theta)/2$:
- on a un état pur symétrique lorsque $\varphi = n\pi \Rightarrow d\sin\theta = n\lambda$
- l'état pur antisymétrique correspond à $\varphi = (2n+1)\frac{\pi}{2} \Rightarrow d\sin\theta = (n+\frac{1}{2})\lambda$

Si ces conditions suffisent à projeter le système dans l'un de ses deux états propres, elles ne correspondent pas à une résonance.

4.2.3 Simulations numériques

Nous allons maintenant étudier (simuler) le comportement d'une paire de rainures larges de $\boxed{\text{w=200nm}}$, de profondeur $\boxed{\text{h=1.5}\mu\text{m}}$, gravées dans de l'or, et séparées d'une distance $\boxed{d = 500nm}$. La réponse optique sera calculée dans l'infra-rouge ($\lambda \in [2, 10\mu m]$), domaine spectral pour lequel le système est dans une configuration fortement sub-longueur d'onde.

Le calcul des coefficients A_1 et A_2 permet de déterminer les champs magnétique et électrique, en particuler le champ $E_x \sim \frac{\partial H_z}{\partial y}$, dans tout l'espace. A l'embouchure de chaque cavité ($x = -d/2, y = 0$ ou $x = +d/2, y = 0$), le champ E_x, normalisé au champ électrique total incident, vaut simplement $E_x/E_0 = (1 - r)A_{n=1\ ou\ 2}$. Or les embouchures sont les endroits où le champ électrique est le plus intense lors des résonances de type Fabry-Perot (*cf* section 3.4.1-B) du chapitre précédent).

Le *facteur d'exaltation* EF_1 (respectivement EF_2) de la cavité 1 (resp. cavité 2) sera donc défini comme l'intensité normalisée du champ électrique E_x à son embouchure : $\boxed{EF_n = |A_n(1 - r)|^2}$ (EF pour *Enhancement Factor*).

Compte tenu des paramètres que l'on s'est fixé, les résonances fondamentales de cavité sont attendues vers $k \approx 1/(4h) = 1666cm^{-1}$ (l'harmonique supérieure apparaîtra aux alentours de $k \approx 3/(4h) = 5000cm^{-1}$).

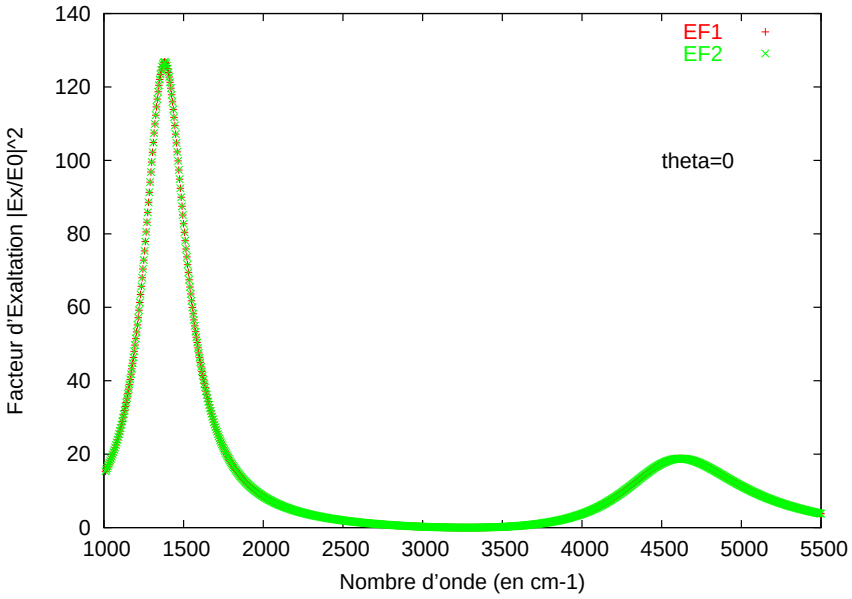


FIG. 4.2 – Spectre des facteurs d'exaltation EF_1 et EF_2 des cavités 1 et 2 respectivement, en incidence normale. Les cavités sont équivalentes ici.

La Figure 4.2 représente les spectres du facteur d'exaltation de chaque rainure, calculés en incidence *normale* $\theta = 0$. Nous constatons que les cavités ont des réponses

parfaitement identiques. Le spectre montre en l'occurrence deux résonances forcées de type Fabry-Perot, l'une centrée à $1375cm^{-1}$ (résonance fondamentale), l'autre centrée à $4555cm^{-1}$ (harmonique). Une cavité isolée, cependant, aurait une résonance fondamentale moins large, à $1435cm^{-1}$, avec un facteur d'exaltation d'environ 430. Nous expliquerons plus loin cette différence.

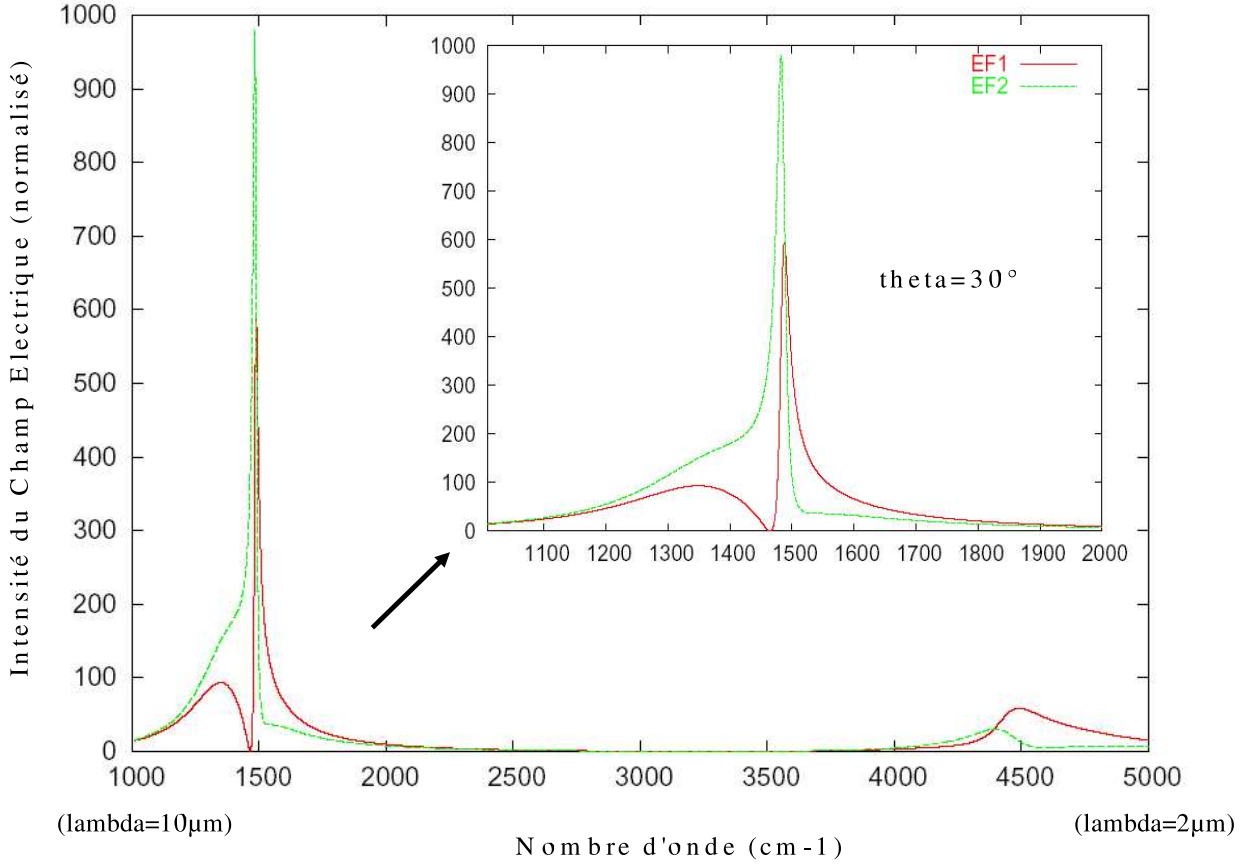


FIG. 4.3 – Spectre étendu des facteurs d'exaltation EF_1 et EF_2 des cavités 1 et 2 respectivement, à $\theta = 30^o$. L'encart donne le comportement plus détaillé des résonances autour de $1500cm^{-1}$. NB : en métal parfait, le pic d'intensité serait multiplié par un facteur 3 environ.

Les spectres calculés en incidence *oblique* sont, eux, sensiblement différents. La Figure 4.3 représente les facteurs d'exaltation de chaque cavité, à $\theta = 30^o$, sur la même plage de fréquence que précédemment. On constate l'apparition d'un nouveau pic de résonance, extrêmement fin, correspondant à une forte concentration de la lumière au sein des fentes. Le facteur maximum d'exaltation est plus grand d'un ordre de grandeur qu'en incidence normale. Le pic centré sur $1485cm^{-1}$ ($\lambda = 6.73\mu m$) émerge d'ailleurs dans la zone de résonance Fabry-Perot classique (épatement spectral à la base du pic).

L'encart de la Figure 4.3 permet d'analyser en détail la réponse spectrale autour de cette résonance fine. On peut constater que *les cavités ne sont plus du tout équivalentes, bien que séparées d'une distance dix fois plus petite que la longueur d'onde*

d'excitation. Sur un intervalle de fréquence *très réduit*, on observe de *brutales variations dans la distribution du champ*. Le tableau de valeurs 4.1 rend compte du phénomène. Les maxima des facteurs d'exaltation de l'une et l'autre cavité ne sont notamment pas atteints à la même fréquence. Cette haute sensiblité apparaît clairement si on regarde, sur la Figure 4.4, les cartes d'intensité du champ magnétique juste au dessus des cavités (en $y = 0$), lorsqu'on balaye le domaine spectral autour de la résonance fine (des basses aux hautes fréquences). Le jeu des flammèches donne l'impression, en effet, que la lumière "saute" d'une cavité à l'autre. Ces fluctuations géantes dans la localisation de la lumière à une échelle fortement sub-longueur d'onde, rappellent les phénomènes de "point chauds" et leur grande sensibilité aux paramètres extérieurs d'excitation.

σ (cm-1)	$\lambda(\mu m)$	EF_1	EF_2
1100.	9.09	24.85	27.52
1348.	7.41	93.57	150.0
1465.	6.82	0.160	394.4
1476.	6.77	90.58	731.8
1482.	6.75	375.7	<u>979.3</u>
1484.	6.74	496.2	946.4
1488.	6.72	<u>594.6</u>	648.9
1489.	6.71	585.4	562.6
1514.	6.60	205.1	44.51
1800.	5.55	20.81	14.78

Le tableau comparatif ci-contre donne quelques valeurs particulières des facteurs d'exaltation. Il permet d'apprécier numériquement les variations brutales dans la distribution de l'intensité à l'échelle du système, sur une plage de fréquence très limitée.

* *

Les courbes spectrales se coupent vers $1489 cm^{-1}$. Les valeurs soulignées correspondent aux maxima atteints par EF_1 et EF_2.

TAB. 4.1 –

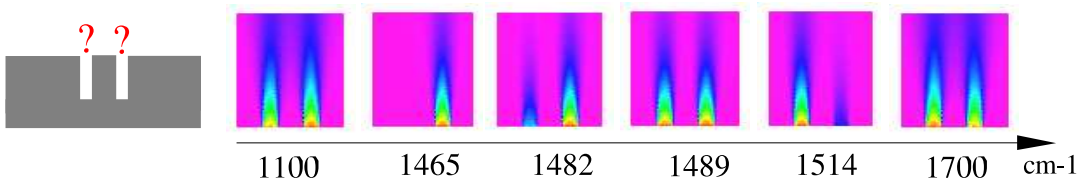


FIG. 4.4 – (couleurs) Distribution spatiale de l'intensité du champ électrique normalisé E_x/E_0, juste au-dessus des cavités sub-longueur d'onde (maximum en rouge), à différentes fréquences autour de la résonance fine. Le jeu des "flammèches" évoque une forte sensiblité (ou susceptibilité) du système, avec des effets de sauts dans la localisation de la lumière.

On a vu en section précédente que deux types de résonance électromagnétique étaient attendus. Les résonances forcées apperçues en Figure 4.2 dans le cas de l'incidence normale, correspondent en fait à l'excitation du mode propre *symétrique* du système (résonance des cavités en phase). La résonance fine et intense est, elle, due à l'excitation du mode propre *antisymétrique* du système (résonance des cavités en opposition de phase), un mode qui nécessite, par nature, une incidence *oblique* pour apparaître effectivement. Cependant, l'incidence oblique casse la symétrie du système, il en résulte alors un déséquilibre entre les profils de résonance des deux cavités. La

grande "susceptibilité fréquentielle" du système, autour de cette résonance fine, provient d'une compétition entre les modes propres symétriques et antisymétriques, tous les deux excités (plus ou moins efficacement) en incidence oblique. On verra plus loin que la résonance fine ne peut apparaître que lorsque les rainures sont séparées d'une distance d *fortement* sub-longueur d'onde ($kd << 1$), à condition que l'angle d'incidence θ soit *non-nul*. On ne verra, en effet, aucune résonance piquée au niveau de l'harmonique supérieur, vers $4500cm^{-1}$, domaine pour lequel $kd > 1$.[4]

Pour compléter un peu plus notre étude, la Figure 4.5 détaille le comportement spectral du système quand on passe de $\theta = 0$ à $\theta = 30^o$:

- en incidence normale, les deux cavités sont le siège d'une même résonance, du reste *plus large* que la résonance d'une cavité isolée, et centrée aussi sur une *plus basse* fréquence.

- en incidence oblique, on voit émerger un pic de résonance supplémentaire, à *plus haute* fréquence, dont l'amplitude crête va rapidement au-delà des valeurs "habituelles" d'une résonance de cavité.

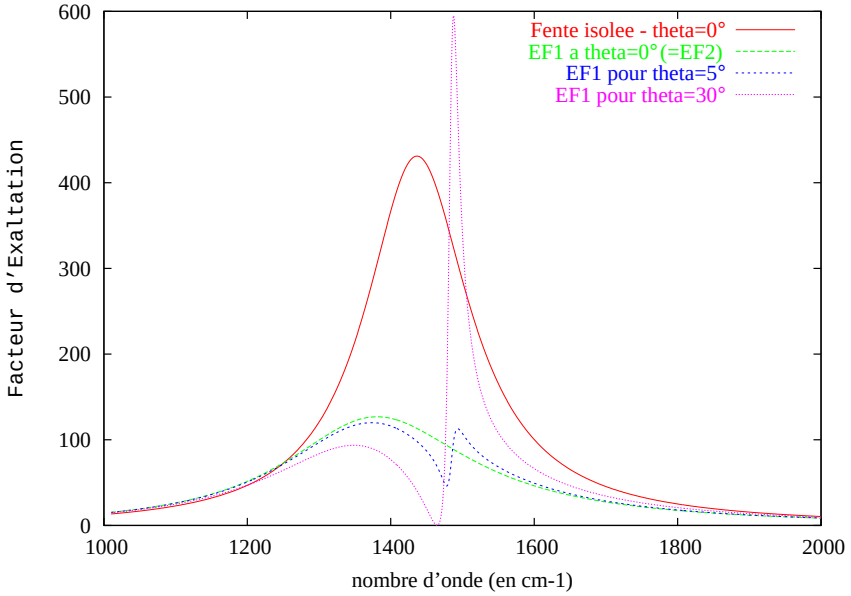


FIG. 4.5 – Spectres du facteur d'exaltation dans une cavité isolée (avec toujours $w = 200nm$ et $h = 1.5\mu m$) en incidence normale, et dans la cavité 1 (en $x = -d/2$) du doublet de fentes, pour les angles d'incidence $\theta = 0, 5$ et 30°. L'exaltation dans la cavité unique est près de 4 fois supérieure à celle du doublet en incidence normale. En incidence oblique, un pic de résonance, qui n'apparaît jamais pour une fente unique, émerge dans le spectre du système à deux fentes. A $\theta = 30^o$, le spectre comprend la résonance symétrique, vers $1380cm^{-1}$, et la résonance antisymétrique à $1485cm^{-1}$. Cette dernière atteint vite de grandes amplitudes aux grands angles.

Au fur et à mesure que l'angle d'incidence θ augmente, la résonance antisymétrique

[4]Si nous nous étions contentés d'étudier deux fentes, en réflexion ou en transmission, soit en incidence normale, soit à une distance d un peu trop grande, cette résonance ne serait pas apparue.

conduit à un piégeage de la lumière de plus en plus important au sein des cavités, ce que montre clairement la Figure 4.6.

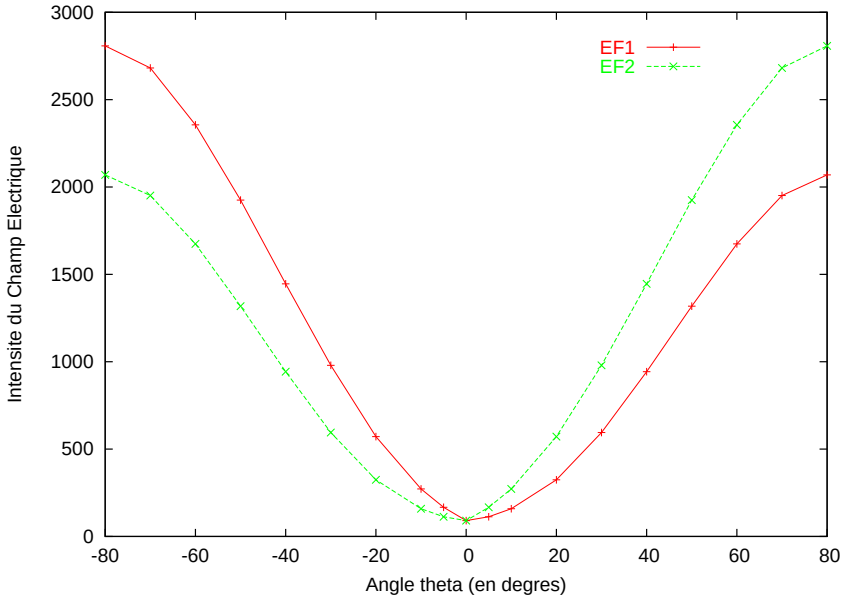


FIG. 4.6 – Maxima d'exaltation obtenus autour de la résonance fine à $1484cm^{-1}$, en fonction de l'angle θ. *N.B. :* au-dessus de 80°, les intensités s'effondrent rapidement (jusqu'à l'annulation), car l'onde excitatrice, arrivant en incidence rasante, est alors ***absorbée*** en surface (ce que montre l'analyse du terme d'excitation V_0, page 64).

4.2.4 Levée de dégénérescence de la résonance Fabry-Perot

Les différentes (et nouvelles) résonances du doublet de cavités sub-longueur d'onde proviennent du couplage entre les deux résonateurs. Afin d'en comprendre l'origine, nous allons mener une étude analytique à partir des résultats établis en section 4.2.2. Cette étude est rendue possible grâce à l'approximation unimodale, et sera poursuivie au-delà de cette seule section. Pour simplifier notre approche analytique, nous considèrerons le métal parfaitement conducteur ($Z = 0$). Cela ne changera en rien la validité des interprétations qui vont suivre.

On rappelle, d'après ce qu'on a vu en page 64, que le système possède 2 résonances électromagnétiques, respectivement (+) et (-), l'une pour laquelle les cavités résonnent en phase (mode +), l'autre pour laquelle les cavités résonnent en opposition de phase (mode -). Ces deux résonances apparaissant aux pulsations notées ω_+ et ω_- (*a priori* différentes) telles que $\Re(e_+)$ (resp. $\Re(e_-)$) s'annule[5]. L'amplitude des coefficients de cavité est alors essentiellement dominée par $1/e_+$ (resp. $1/e_-$), et bornée par $\Im(e_+)$ (resp.

[5]Le $\sin(kh)$ en facteur des $e_\pm$, dans les A_n, ne conduit jamais à une résonance, sauf si $w = 0$, ce qui n'a pas de sens ici.

$\Im(e_-)$). Nous allons donc examiner de plus près ce qui se cache derrière les termes e_+ et e_- (introduits en page 64).

Notons tout d'abord $\boxed{\omega_0 = ck_0}$ la pulsation propre du mode Fabry-Perot fondamental, à laquelle chaque fente résonne *isolément* (en l'absence de couplage), et $\boxed{\gamma_0}$ la largeur spectrale de cette résonance. Dans le Chapitre 3, page 46, on a montré, par un développement limité simple, que le coefficient A_0 du champ intra-cavité, autour de la résonance fondamentale ($k_0 h \approx \pi/2$), était donné, en métal parfait, par :

$$A_0 \approx \frac{ic/h}{(\omega_0 - \omega - i\gamma_0/2)} \quad \text{avec} \quad \gamma_0 = (k_0 w)c/h \approx \frac{\pi w c}{2h^2} << \omega_0 \quad (rad.s^{-1})$$

ce qui conduisait à une intensité maximale $\boxed{|A_0|^2 \approx (\frac{4}{k_0 w})^2}$

Lorsque deux cavités (identiques) sont maintenant couplées, les coefficients de champ A_1 et A_2 se comportent comme

$$A_{n=1,2} \sim \frac{\cos(\varphi)}{e_+} + (-1)^n \frac{i\sin(\varphi)}{e_-} \quad \text{avec} \quad \varphi = (kd\sin\theta)/2$$

En effectuant alors le même développement limité que pour la fente unique ($\cot(x + \delta x) \approx \cot(x) - \frac{1}{\sin^2 x}\delta x$) autour de k_0, pour les valeurs propres e_+ et e_-, on obtient :

$$e_+ \approx (\omega_+ - \omega - i\frac{\gamma_+}{2})h/c$$

$$e_- \approx (\omega_- - \omega - i\frac{\gamma_-}{2})h/c$$

$$\text{Avec} \quad \omega_\pm = \omega_0 \mp \Delta \quad \text{où} \quad \Delta = \frac{\gamma_0}{\pi}\int_1^\infty \frac{sinc^2(k_0 wu/2)}{\sqrt{u^2-1}} \cdot \cos(k_0 du)]du \tag{4.2}$$

$$\text{Et} \quad \frac{\gamma_\pm}{\gamma_0} = \frac{2}{\pi}\int_0^1 \frac{sinc^2(k_0 wu/2)}{\sqrt{1-u^2}} \cdot [1 \pm \cos(k_0 du)]du \tag{4.3}$$

γ_+ et γ_- sont les largeurs spectrales qui limitent l'amplitude des résonances (+) et (-). J'appellerai largeurs "réduites" les rapports normalisés $\frac{\gamma_\pm}{\gamma_0}$.

Le couplage, via le champ externe, de deux cavités résonnant individuellement à ω_0, provoque donc la levée de dégénérescence de la résonance Fabry-Perot. Cette scission en deux modes complémentaires est quantifiée par le *décalage* fréquentiel $\pm\Delta$. *Les résonances Fabry-Perot des cavités, en phase, ou en opposition de phase, n'ont pas les mêmes caractéristiques spectrales* (largeur et pulsation propre).

Les fréquences ω_+ et ω_- de ces "nouveaux" modes restent effectivement voisines de ω_0 (ça reste du Fabry-Perot), mais on verra que *le facteur de qualité de l'un et l'autre dépendra très sensiblement de la distance inter-fente*, c'est-à-dire de la nature du couplage, en champ proche ($kd < 1$), ou en champ lointain ($kd >> 1$)[6].

[6] L'échelle de longueur qui caractérise le champ proche est $\lambda/(2\pi)$.

Dans notre exemple, la résonance symétrique (+) est décalée vers les basses fréquences, tandis que la résonance (-) antisymétrique est décalée vers les hautes fréquences :

$$\Delta/(2\pi c) \approx 50\ cm^{-1} \left\{ \begin{array}{ll} \omega_+/(2\pi c) = 1375 & \omega_-/(2\pi c) = 1484\ cm^{-1} \\ \gamma_+/(2\pi c) \approx 325 & \gamma_-/(2\pi c) \approx 20\ cm^{-1} \end{array} \right.$$

4.3 Etude du couplage en champ proche

4.3.1 Analyse des caractéristiques des modes

Afin d'éclaicir la physique en jeu dans un doublet de fentes séparées par une distance sub-longueur d'onde, en complète relation avec les simulations numériques précédemment exposées, poursuivons l'étude analytique dans le cas particulier du couplage fort en champ proche, *i.e.* pour $kd << 1$. On considèrera encore le métal parfaitement conducteur ($Z = 0$) pour simplifier. L'intégrande figurant dans l'expression de $\gamma_\pm$ (4.3) établie plus haut, peut s'approximer facilement puisque $k_0 w < k_0 d << 1$ (on effectue simplement un développement limité au premier ordre pour le $sinc^2$ et le cos). Il vient alors :

$$\gamma_+ \approx 2\gamma_0 \quad \text{et} \quad \gamma_- \approx (\frac{k_0 d}{2})^2 \gamma_0 \tag{4.4}$$

D'autre part, les coefficients de champ $A_{n=1,2}$, écrits en page 65, valent, aux fréquences propres du système :

$$|A_{n=1,2}|^2(\omega = \omega_+) = |\frac{2\cos(\varphi)}{h\gamma_+/c} \cdot \frac{1}{\sin(k_0 h)}|^2$$

$$|A_{n=1,2}|^2(\omega = \omega_-) = |\frac{2\sin(\varphi)}{h\gamma_-/c} \cdot \frac{1}{\sin(k_0 h)}|^2$$

Comme $k_0 h \approx \pi/2$, et $\varphi \approx k_0 d(\sin\theta)/2 << 1$, on trouve finalement :

$$|A_{n=1,2}|^2(\omega = \omega_+) \approx \frac{1}{(k_0 w)^2} \tag{4.5}$$

$$|A_{n=1,2}|^2(\omega = \omega_-) \approx (\frac{4\sin\theta}{(k_0 w)(k_0 d)})^2 \tag{4.6}$$

Nous voyons clairement apparaître plusieurs choses, avec lesquelles les simulations numériques sont en complet accord : a) la largeur γ_- de la résonance (-) antisymétrique *s'effondre* quand $kd \to 0$ *i.e.* quand le couplage en champ proche est fort, b) la largeur du mode (+) symétrique est double de celle de la résonance Fabry-Perot d'une fente unique, d'où une intensité 4 fois inférieure à celle d'une résonance isolée (voir Figure 4.5), c) le mode antisymétrique n'est pas du tout excité en incidence normale, d) une distance d sub-longueur favorise largement l'exaltation du mode (-), en $1/(kd)^2$, dès lors que l'angle d'incidence est suffisamment élevé.

On observe d'autre part que l'intensité $|A|^2 \sim (\frac{1}{\gamma_+})^2$ à $\omega = \omega_+$, ce à quoi on s'attend pour une oscillation forcée. En revanche, $|A|^2 \sim \frac{1}{\gamma_-}$ pour $\omega = \omega_-$: on a perdu un facteur $1/(kd)^2$. Ceci peut être compris en rappelant le fait que les valeurs propres e_+ et e_- sont pondérées, au numérateur, par $\cos(\varphi)$ et $\sin(\varphi)$ respectivement (voir l'équation 4.1, page 65). Dans le cas d'une distance sub-longueur d'onde, le facteur d'excitation du mode (+) est $\cos(\varphi) \approx 1$, tandis que celui du mode (-) $\sin(\varphi) \approx kd\sin(\theta)/2$. Par conséquent, la puissance en kd est abaissée au dénominateur pour le mode (-), mais non pour le mode (+).

Cela signifie, physiquement, que les deux modes propres du système ne sont pas excités avec la même force, ou, dit sous une autre manière, *ne sont pas sensibles à la même partie du champ incident*. En effet, au niveau des cavités sub-longueur d'onde, ce dernier peut s'écrire $e^{ik\sin\theta x} \approx 1 + ikx\sin\theta$:

- Le terme pair (d'ordre 0), correspondant à la valeur moyenne du champ, ne peut exciter que le mode qui a la *même parité*, c'est-à-dire le mode(+).

- Le terme impair, correspondant à la variation *locale* du champ incident, tel que $V_1 = -V_2$, excitera naturellement le mode (-) (d'où son absence totale en incidence normale, et son maximum d'amplitude pour $\theta \sim 80^o$).

Par extension, un mode propre serait d'autant plus difficilement (faiblement) excité qu'il correspondrait à une distribution spatiale du champ ayant de multiples et brusques variations de phase.

Comme nous l'avons dit dans la section Simulations Numériques, les champs dans les cavités 1 et 2 ne sont pas identiques autour de la résonance (-) (voir Figure 4.3). Leurs maxima de résonance ne sont pas atteints exactement aux mêmes fréquences. Nous nous intéressons ici à caractériser le (petit) décalage fréquentiel qui existe entre les deux maxima. Pour cela, il faut trouver les fréquences ω_1^{max} et ω_2^{max} pour lesquelles les intensités dans chaque cavité sont maximales autour de la résonance (-). On résout l'équation $\partial(|A_n|^2)/\partial\delta\omega = 0$ avec $\delta\omega = \omega_- - \omega$, et pour un angle d'incidence suffisamment grand ($\sin\theta >> k_0 d/2$), on obtient :

$$\omega_{n=1,2}^{max} \approx \omega_- - (-1)^n \frac{\gamma_0}{4(1+\hat{\Delta}^2)\sin\theta}(\frac{k_0 d}{2})^3$$

Où $\hat{\Delta} = \frac{2\Delta}{\gamma_0}$ est le décalage "réduit" total entre les 2 fréquences propres des 2 cavités. Enfin :

$$|A_{n=1,2}^{max}|^2 = [\frac{4\sin\theta}{(k_0 w)(k_0 d)}]^2 + (-1)^n \frac{8\hat{\Delta}\sin\theta}{(k_0 w)^2(k_0 d)(1+\hat{\Delta}^2)}$$

Ces résultats sont tout à fait cohérents avec les spectres simulés. Les fréquences de plus forte intensité sont légèrement décalée par rapport à ω_-, et ce, dans un sens contraire pour A_1 et A_2. On comprend ainsi le comportement fortement susceptible du champ sur une plage fréquentielle extrêmement réduite (étant donné la finesse de résonance) et par conséquent, cette impression d'instabilité concernant la localisation

de la lumière. Notons à propos que le champ maximal dans la cavité 2 est toujours supérieur à celui de la cavité 1 si $\theta > 0$ (et inversement si $\theta < 0$). Le second terme de $|A_{max}|^2$ (petit devant le premier) est directement lié à la perturbation du mode (+).

4.3.2 Analogie aux dipôles oscillants

Les résultats établis à travers notre approche analytique peuvent être physiquement compris et illustrés, en notant qu'ils sont complètement analogues à ceux présentés par LYUBOSHITZ [4] sur ***deux dipôles oscillants, couplés en champ proche***. Rappelons les grandes lignes de cet article.

Un dipôle oscillant peut être modélisé par un oscillateur harmonique amorti, de pulsation propre ω_0. Autour de cette fréquence, sa susceptibilité peut s'écrire

$\chi(\omega) = \frac{3}{4k^3}\frac{\gamma_0}{\omega_0-\omega-i\gamma_0/2}$, où γ_0 incarne l'effet des pertes radiatives spontanées, propres à toute oscillation de charge.

Considérons maintenant le système de deux dipôles oscillants, de moments respectifs $\vec{P_1}$ et $\vec{P_2}$, *colinéaires*, et situés à une distance R l'un de l'autre. Les effets retardés sont pris en compte. Les conditions de résonance des moments $\vec{P_1}$ et $\vec{P_2}$ sont alors caractérisées par : $\boxed{\omega_0 - \omega - i\gamma_0/2 \pm \frac{3}{2}\gamma_0 e^{ikR}[\frac{1}{(kR)^3} - \frac{i}{(kR)^2}] = 0}$

Dans le cas du couplage en champ proche ($kR << 1$), on obtient

- un <u>mode symétrique</u> $[1,1]$ ou $(\rightarrow\rightarrow)$ $\boxed{\omega_+ \approx \omega_0 - \frac{3}{2}\frac{1}{(kR)^3}\gamma_0 \text{ et } \gamma_+ = 2\gamma_0}$

- un <u>mode antisymétrique</u> $[1,-1]$ ou $(\rightarrow\leftarrow)$ $\boxed{\omega_- \approx \omega_0 + \frac{3}{2}\frac{1}{(kR)^3}\gamma_0 \text{ et } \gamma_- = \frac{(kR)^2}{10}\gamma_0}$

Le lecteur trouvera en Annexe, page 233, tous les détails de la démonstration. L'obtention de ces résultats nécessite d'effectuer un développement limité en kR au moins jusqu'à l'ordre 4, afin de faire apparaître le terme de plus bas ordre pour γ_-, chose qui n'est pas triviale : *ce qui donne une largeur spectrale au mode antisymétrique, lorsque $kR \rightarrow 0$, sont justement les effets retardés*[7].

Ces résultats sont donc très similaires à ceux établis en page 72 pour le doublet de cavités séparées d'une distance sub-longueur d'onde. La nature des modes propres du système, leurs largeurs spectrales ainsi que la levée de dégénérescence $\omega_+ < \omega_0 < \omega_-$, sont quasiment identiques[8].

L'analogie physique entre deux dipôles oscillants en interaction d'une part, et deux cavités (sub-longueur d'onde) à la résonance Fabry-Perot d'autre part, est d'autant

[7]En l'absence d'effets retardés, nous aurions obtenu, à tort, des largeurs variant comme $1/(kR)^2$ pour les 2 résonances.

[8]Le décalage $\omega_\pm - \omega_0$ diffère cependant littéralement (on a un décalage $\sim \ln(kd/2)$ dans le cas du système bifente), quoique la propension à diverger quand $kR \rightarrow 0$ est respectée.

plus justifiée par les résultats de la section 2.4.3 du Chapitre 2 (page 27). Une fente métallique réagit comme un oscillateur amorti, et, à la résonance du mode guide d'onde, ses parois verticales constituent des accumulateurs de charge (effet de condensateur), dont le signe change d'une paroi à l'autre. Il en résulte bien un moment dipolaire effectif, prenant, ici, son maximum d'amplitude à l'embouchure de la cavité, et décroissant rapidement en allant vers le fond du résonateur, comme le montre la Figure 4.7[9]. Une ouverture sub–longueur d'onde se comporte donc, en champ lointain, comme un dipôle oscillant de rayon électromagnétique effectif $\boxed{r_0 = \frac{2w}{\pi}}$[10]. La Figure 4.7 permet de visualiser le couplage, symétrique et antisymétrique, des cavités (*i.e.* des moments dipolaires effectifs) autour de la résonance Fabry-Perot :

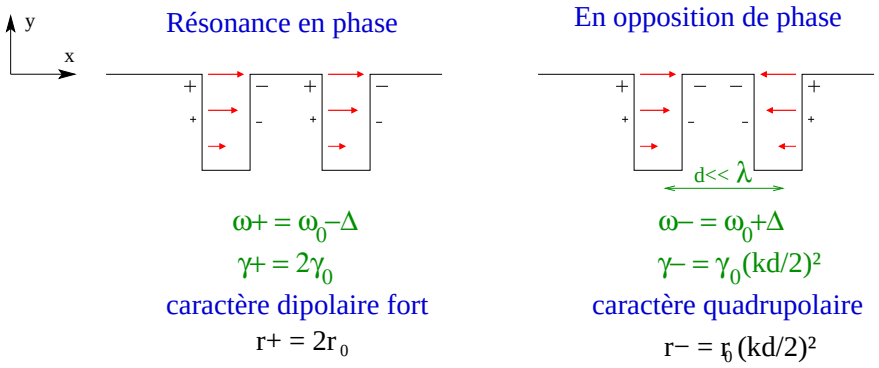


FIG. 4.7 – Schéma du couplage symétrique et antisymétrique des cavités couplées en champ proche, autour de la résonance Fabry-Perot, avec la distribution de charge associée. La résonance en phase matérialise un fort moment dipolaire (pertes radiatives importantes) tandis que la résonance en opposition de phase est caractérisée par un moment quadrupolaire, faiblement radiatif.

- Lorsque deux cavités sub-λ, couplées en champ proche, *résonnent en phase*, leur moments dipolaires s'additionnent pour donner un dipôle équivalent de rayon double $\boxed{r_+ = 2r_0}$. Ce dipôle total *rayonne donc doublement*. On a d'importantes pertes radiatives qui explique la grande largeur de la résonance symétrique et la faible exaltation de lumière associée.

- Au contraire, lorsque les cavités *résonnent en opposition phase*, les moments dipolaires se compensent l'un l'autre, il en résulte un moment très faible, de rayon effectif $\boxed{r_- = r_0(kd/2)^2}$ (6% du rayon initial dans notre exemple). Etant donné

[9]Si r est la distance à l'intersection de deux plans conducteurs (en 2D), la densité superficielle de charge varie approximativement en $1/r^3$ autour d'un bord de marche métallique (comme aux embouchures des cavités) et en r^3 dans un coin fermé (comme au fond des cavités) [7]. Le champ électrique présente un comportement singulier près des pointes ou des arêtes métalliques, ce qui peut conduire à l'effet de foudre bien connu ("lightning rod effect"). Les bords d'ouverture métallique sont donc des lieux naturels d'accumulation de charge (et de fort champ).

[10]Transposée au problème des fentes métalliques, la formule classique $\gamma = \frac{r\omega^2}{c}$, où r désigne le rayon électromagnétique d'un dipôle oscillant [4], permet d'identifier un rayon électromagnétique pour le moment effectif d'une cavité puisque $\gamma_0 = k_0 wh/c$.

la configuration antisymétrique, on a plutôt affaire à un *quadrupôle*. Sa *faible radiativité* explique pourquoi cette résonance est aussi fine et s'accompagne d'un fort piégeage de la lumière (mode "localisant").

Remarque : On pourrait ramener l'étude du problème des 2 fentes à l'étude de 2 résonateurs "fictifs" indépendants, par l'introduction de variables dites normales $\mathcal{A}_+ = \frac{[A_1+A_2]}{2i} \propto \frac{\cos\phi}{e_+}$ pour le premier résonateur ($\rightarrow$ dipôle), et $\mathcal{A}_- = \frac{[A_1-A_2]}{2} \propto \frac{\sin\phi}{e_-}$ pour le deuxième ($\rightarrow$ quadrupôle).

Que les formules asymptotiques du système bifente d'un côté, et du couple de dipôles oscillants (colinéaires) de l'autre, soient aussi comparables est agréablement surprenant, quand on voit que tout un demi-espace est rempli de métal pour la paire de fentes. N'oublions pas que si l'on parle de moment dipolaire effectif au niveau des embouchures sub-longueur d'onde, c'est selon une vision de profil de notre système, mais ce dernier est en fait infini dans la direction z. Il s'agit donc davantage d'une "distribution" dipolaire, invariante par translation suivant z.

Enfin, cette analogie reste vraie pour un problème de fentes en transmission, chaque embouchure incarnant un moment dipolaire effectif.

La possibilité, désormais, de raisonner sur une collection de cavités sub-λ couplées, comme on raisonne sur un ensemble de dipoles oscillants en interaction, chacun auréolé de leur sphère de diffusion, simplifie grandement la vision des choses, notamment quand il s'agira d'étudier des structures métalliques plus complexes, comme ce sera le cas au Chapitre 5.

4.3.3 Rayonnement dipolaire et/ou quadrupolaire

Pour compléter l'analogie du système bifente au cas des dipôles oscillants, il est nécessaire de vérifier que le diagramme de rayonnement des cavités a effectivement une signature dipolaire pour le mode (+), et quadrupolaire pour le mode (-). En dehors du champ incident et du rayon réfléchi spéculaire, le champ magnétique diffusé par le système est donné par

$$H = \int_{-\infty}^{+\infty} R(Q) e^{i(Qx+qy)} dQ$$

Avec ici, explicitement

$$R(Q) = i\frac{2w}{\lambda}(1+Z)[\frac{\cos(Qd/2)\cos(\varphi)}{e_+} + \frac{\sin(Qd/2)\sin(\varphi)}{e_-}]\frac{V_0 sinc(Qw/2)}{\sqrt{k^2-Q^2}+kZ}$$

Les ondes planes réfléchies $e^{i(Qx+qy)}$ sont associées à une distribution continue $R(Q)$, homogène à $1/Q$. La quantité élémentaire $R(Q)dQ$ donne donc le "poids" des ondes de vecteur compris entre Q et $Q+dQ$. Seules les ondes dont $|Q| < k$ sont rayonnées (propagatives suivant y). Intéressons-nous à elles. En écrivant naturellement $Q = k\sin(\rho)$, on leur attribue une direction angulaire $\rho \in [-\pi/2, \pi/2]$.

Moyennant $dQ = k\cos(\rho)d\rho$, on peut poser $R(Q)dQ = f(\rho)d\rho$. *La distribution de puissance rayonnée par le système* (en dehors de la réflectivité spéculaire), *est donnée par l'indicatrice angulaire* $\boxed{|f(\rho)|^2}$. Ainsi viennent les déductions :

- Près de la **résonance (-)**, $1/e_-$ gourverne la réflectivité et

$$f(\rho) \sim \Theta(\rho) \cdot \frac{\sin(\varphi)}{\Im(e_-)} \text{ avec } \Theta(\rho) = \frac{\sin(kd/2 \cdot \sin\rho)\cos(\rho)}{\cos(\rho) + Z}$$

La représentation graphique de $|\Theta(\rho)|^2$, pour $kd << 1$, en coordonnées cylindriques, est montrée sur la Figure 4.8. Elle indique deux lobes de diffusion, symétriques par rapport à l'axe $\rho = 0$, ayant les axes $\rho = 0$ (ou $x = 0$) et $\rho = \pm\pi/2$ (ou $y = 0$) comme axes nodaux. Cela évoque clairement *le rayonnement, en champ lointain, d'un quadrupole.*

- Près de la **résonance (+)**, $1/e_+$ gourverne la réflectivité et

$$f(\rho) \sim \Theta(\rho) \cdot \frac{\cos(\varphi)}{\Im(e_+)} \text{ avec } \Theta(\rho) = \frac{\cos(kd/2 \cdot \sin\rho)\cos(\rho)}{\cos(\rho) + Z}$$

Le rayonnement est, cette fois, décrit par un gros lobe de diffusion, centré et maximum en $\rho = 0$, et ayant pour axe nodal $\rho = \pm\pi/2$. A cette résonance est bien associé un *champ rayonné de signature typiquement dipolaire.*[11]

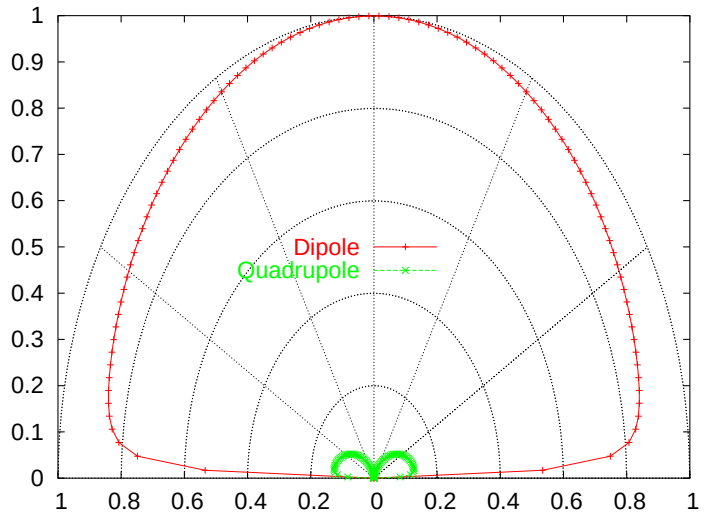


FIG. 4.8 – Lobes de rayonnement $|\Theta((\rho)|^2$ selon que le système résonne symétriquement (dipôle) ou antisymétriquement (quadrupôle). Pour cet exemple, $Z = -i0.025$ (impédance de l'or à $1500cm^{-1}$) et $kd = 0.75$. Θ est une fonction structurelle qui ne tient *pas* compte de l'amplitude de résonance.

[11] Notez une différence dans le cas du métal parfait ($Z = 0$) : les ondes radiées par les cavités à la surface du système ne sont plus absorbées, de sorte que le plan $y = 0$, selon lequel les moments dipôlaires sont alignés, ne constitue plus un plan nodal.

• Dans le cas du métal parfait ($Z = 0$), l'intégration sur l'ensemble de tous les vecteurs rayonnés donne, pour $kd << 1$

$$\int_{-\pi/2}^{\pi/2} |\Theta(\rho)|^2 d\rho = \left| \begin{array}{ll} (\pi/2)(kd/2)^2 & \text{si la résonance (-) domine largement} \\ \pi & \text{si c'est la résonance (+) qui domine} \end{array} \right.$$

On pourrait penser ainsi que la puissance réfléchie lors de la résonance (-) est inférieure à celle de la résonance (+). C'est faux. N'oublions pas le rôle des quantités $\cos(\phi)/\Im(e_+)$ et $\sin(\phi)/\Im(e_-)$ pour véritablement conclure.

Un calcul rapide montre que le rapport de la réflectivité lors de la résonance (-) <u>sur</u> la réflectivité lors de la résonance (+) (hors rayon spéculaire) est en fait donné par

$$\frac{1}{2}(\frac{kd}{2})^2 |\frac{\Im(e_+)}{\Im(e_-)} \tan(\varphi)|^2 = 2\sin^2(\theta)$$

Ce résultat remarquable conduit à une conclusion immédiate : *la résonance antisymétrique rayonne moins que la résonance (+) si* $\theta < \pi/4$ (du moins en métal parfait). On a pourtant vu que le mode (-) était potentiellement très intense, du fait d'une moindre radiativité *intrinsèque*. C'est donc une question de relativité : en excitant au maximum ($\theta \sim 80$ degrés) le mode antisymétrique, l'intensité localisée dans les fentes est en effet très grande *comparée* aux fuites radiatives, mais ces dernières peuvent devenir supérieures à celles de la résonance symétrique (qui ne pourra jamais localiser, donc perdre autant d'énergie).

4.4 Extension de l'étude analytique

Nous avons mené, jusque là, une étude analytique approfondie dans le cas particulier du couplage en champ proche ($kd << 1$), afin d'expliquer physiquement les observations tirées des simulations numériques. Néanmoins, l'étude peut être étendue pour une distance d quelconque. Nous allons caractériser de manière plus générale les résonances propres du système à deux fentes. Ces résultats rappelleront d'ailleurs fortement ceux de Morawitz [5], dans un article où il est question, là aussi, d'une *interaction dipôle-dipôle* dans l'espace libre.

4.4.1 Caractérisation des largeurs de résonance

Toujours dans le cadre du métal <u>parfait</u>, les largeurs spectrales réduites (4.3), peuvent s'exprimer plus simplement de la manière suivante :

$$\frac{\gamma_\pm}{\gamma_0} = (1 \pm J_0(k_0 d)) = \left| \begin{array}{ll} 2 & \text{avec le signe (+) si } kd << 1 \\ (k_0 d/2)^2 & \text{avec le signe (-) si } kd << 1 \\ 1 \pm \sqrt{\frac{2}{\pi k_0 d}} \cos(k_0 d - \pi/4) & \text{si } kd >> 1 \end{array} \right.$$

Ces formules sont issue d'une approximation des expressions exactes (Annexe, page 229). $J_n(x)$ représente la fonction de Bessel de première espèce, d'ordre n.

La Figure 4.9 montre le graphe d'évolution des largeurs spectrales, en fonction de la distance de séparation d (donc de la force du couplage). Il a été établi à la fréquence $k_0 \approx 1500cm^{-1}$ (zone spectrale de la résonance fine, dans nos simulations numériques). Il manifeste une sorte d'entremêlement qui traduit l'*inter-dépendance* continuelle des modes propres (+) et (-). Les comportements des $\gamma_\pm$ lorsque $d \to 0$ rejoint exactement ce qu'on a établi dans la section du couplage fort en champ proche. On assiste notamment à l'effondrement de la largeur de la résonance antisymétrique.

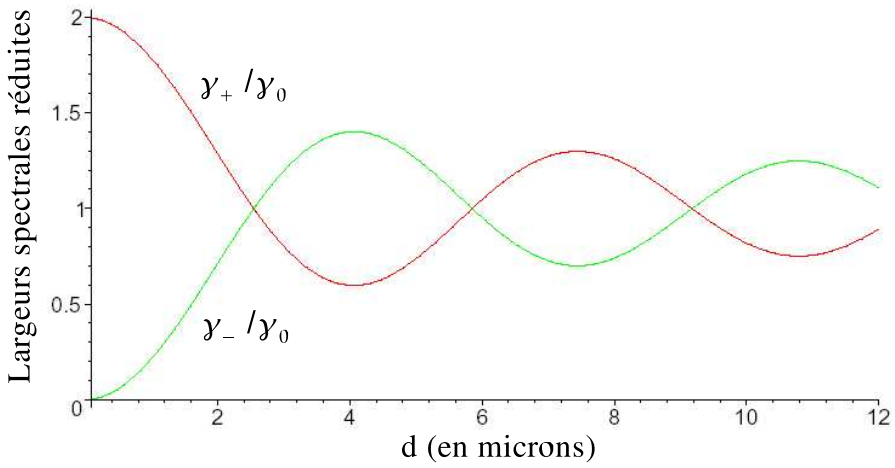


FIG. 4.9 – Evolution des largeurs de résonance $\gamma_\pm/\gamma_0$ en fonction de la distance d en μm, pour $w = 200$nm, à $1500cm^{-1}$. A $d = 1$mm (non montré), les courbes oscillent entre 0.97 et 1.03.

Le facteur de qualité Q de chacune des résonances est donné respectivement par $\omega_\pm/\gamma_\pm$. Des largeurs $\frac{\gamma_\pm}{\gamma_0}$ petites traduisent donc d'intenses résonances (des exaltations locales du champ). On le comprend physiquement puisqu'elles font intervenir uniquement la partie *radiative* de la sphère de diffusion (elles sont issues de l'intégrale (4.3) sur toutes les ondes diffusées de vecteur $k_x = ku$ avec $|u| \leq 1$). Elles correspondent donc aux pertes d'énergie par rayonnement (les seules pertes possibles en métal parfait). La destruction des ordres radiatifs signifie donc une intégrale de faible valeur, donc une résonance piquée.

On peut chercher à savoir *quelles sont les conditions opto-géométriques générales qui minimisent les largeurs de résonances.* Considérant les formules analytiques introduites plus haut, cela revient à chercher les racines de $J_0^{'}(x) = J_1(x)$, où $x = kd$.

Etant donné la différence de signe entre γ_+ et γ_-, *un minimum pour l'un est nécessairement un maximum pour l'autre* :

γ_- est minimum pour les racines d'ordre pair : kd =0, 7.016,...

γ_+ est minimum pour les racines d'ordre impair : kd =3.832, 10.173,...

Enfin, $\gamma_+ = \gamma_-$ quand kd est racine de $J_0(kd)$: kd =2.405, 5.52, 8.654, ...[12]

4.4.2 Caractérisation du décalage fréquentiel Δ

L'écart fréquentiel Δ qui sépare les fréquences propres ω_+ et ω_- des modes symétriques et antisymétriques du doublet de fentes sub-λ, est défini en page 71. Il est tel que $\omega_\pm = \omega_0 \mp \Delta$. [13]En métal parfait, on peut raisonnablement simplifier son expression sous la forme suivante[14]

$$\frac{\Delta}{\gamma_0} \approx -1/2 \cdot Y_0(k_0 d) = \left| \begin{array}{ll} -(\ln(k_0 d/2) + C_E)/2 & \text{si } kd < 1 \\ \\ -\sqrt{\frac{1}{2\pi k_0 d}} \sin(k_0 d - \pi/4) & \text{si } kd > 1 \end{array} \right.$$

L'intégrale donnant ce décalage (page 71) fait intervenir la partie inhomogène de la sphère de diffusion, *i.e.* les ondes de surface, propagatives suivant x et évanescentes suivant y.

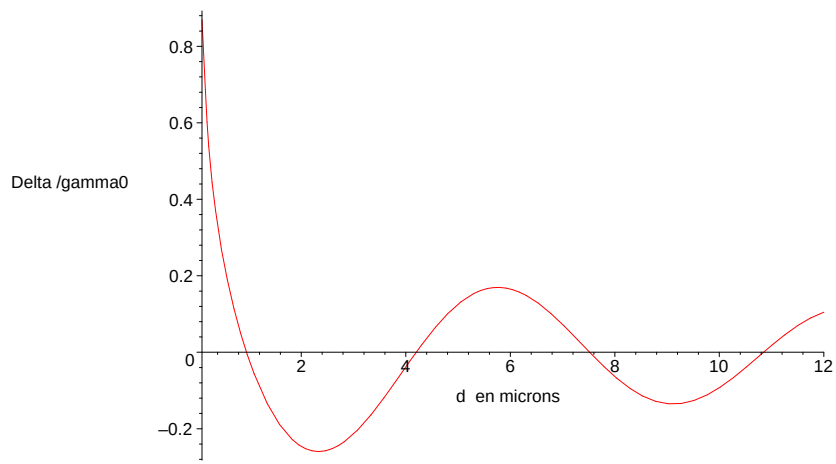


FIG. 4.10 – Evolution du décalage réduit Δ/γ_0 (expression exacte) en fonction de la distance de séparation d, à $1/\lambda_0 = 1500cm^{-1}$, en métal parfait. La largeur des 2 fentes vaut $w = 200$nm et $\gamma_0 = k_0 wc/h$ équivaut à environ $190cm^{-1}$. *NB :* à la limite (non physique) où d tend vers 0, $\Delta/\gamma_0 \to 1.044$.

Comme le montre la Figure 4.10, Δ oscille avec d. Le mode antisymétrique n'est donc pas toujours situé aux fréquences les plus hautes par rapport au mode symétrique. Il peut même s'annuler, prouvant par là que les 2 modes ne se "repoussent" pas systématiquement. Néanmoins, dans ces conditions particulières, l'un des modes domine obligatoirement l'autre.

Retenons que le couplage fortement sub-longueur d'onde ($kd << 1$) conduit à la "résolution" très nette des fréquences propres, le décalage Δ devenant maximal, avec

[12]Exemple : $kd = 2.405$ à $1/\lambda = 1500cm^{-1}$ donne $d = 2.55\mu m$. On a bien $\gamma_+ = \gamma_-$ sur la Figure 4.9.

[13]Δ n'est donc pas le shift par rapport à la fréquence Fabry-Perot mais *s'ajoute* au shift d'une fente sub-λ unique (pour laquelle on a déjà $k_0 h \approx \pi/2 - \frac{kw}{\pi}(3/2 - C_E - \ln(kw/2))$).

[14]Voir Annexe C.1. La tendance asymptotique pour $kd < 1$ est limitée par le fait que $0 < w < d$. La divergence à $kd = 0$ n'est pas à propos.

la hiérarchie $\omega_+ < \omega_0 < \omega_-$ (soit un arrangement du mode le plus large au mode le plus fin, comportement que nous retrouverons d'ailleurs dans le système à 3 fentes).

Excepté le cas $kd \sim 0$, on observe que la différence des largeurs $\gamma_+ - \gamma_-$ est maximale quand $\Delta = 0$. Inversement, l'écart des fréquences propres est maximal lorsque $\gamma_+ = \gamma_-$. Notons que Δ s'annule pour la 1ère fois quand $kd = 0.9$ (dans ce cas $\gamma_+ = 1.8\gamma_0$ et $\gamma_- = 0.2\gamma_0$).

Enfin, quand $d \to \infty$, les simulations montrent bien que $\Delta \to 0$ et $\gamma_\pm \to \gamma_0$ [15] : les 2 résonances ont convergé pour se confondre. Le couplage a disparu, on retrouve deux fentes isolées, ce qu'illustre le spectre de la Figure 4.11.

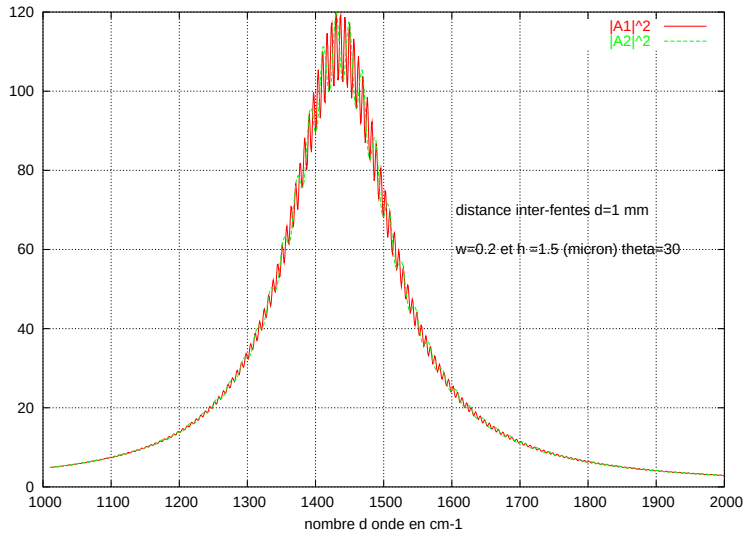


FIG. 4.11 – Intensité $|A|^2$ pour $d = 1$ mm, à l'angle $\theta = 30^o$. On retrouve exactement la résonance forcée de la fente unique. Il reste toutefois de très rapides oscillations dues aux multiples interférences en champ lointain, ce qui révèle que même pour des distances de séparation 5000 fois plus grandes que la largeur w des fentes, le couplage se fait encore sentir.

4.4.3 Sub-radiance/Super-radiance

En dehors des deux cas limites $kd << 1$ et $kd >> 1$, il existe un *régime transitoire* dans lequel on peut trouver une valeur particulière de kd où c'est la *résonance symétrique (en phase) qui est sensiblement optimisée.*

Parmi les minima de γ_+ détaillés en fin de section 4.9, celui obtenu pour $kd = 3.832$, *i.e.* $\boxed{\frac{d}{\lambda} = 0.61}$ retient l'attention. Dans ces conditions, en effet, le décalage Δ y est nul :

[15] Il suffit de voir que le terme $\cos(kdu)$ des intégrandes devient infiniment oscillant, ce qui rend sa contribution aux intégrales nulle.

$\omega_+ = \omega_- = \omega_0$. *On retombe curieusement sur 2 cavités résonnant chacune à leur fréquence propre initiale, mais bien mieux que si elles étaient découplées.* Par conséquent, elles rayonnent (ou perdent) moins d'énergie. Le terme de configuration *sub-radiante* est choisie. En effet, le phénomène opposé de *super-radiance* correspond à la mise *en phase* d'un ensemble (dense) de dipoles, d'où en résulte un moment dipolaire macroscopique rayonnant très efficacement (exaltation cohérente de la radiation spontanée) [6]. Revenant alors au système bifente, on peut dire que *lorsque* $kd \to 0$*, on a un effet de super-radiance à la résonance symétrique, et de sub-radiance à la résonance (-).* Par un choix de distance adéquat, on peut avoir le cas inversé.

Le graphe de la Figure 4.9, calculé à $1/\lambda = 1500cm^{-1}$ ($\lambda = 6.6\mu$m), révèle en effet qu'en prenant $d \approx 4\mu$m, on a un rapport $\frac{\gamma_+}{\gamma_0} = 0.6$, tandis qu'on a $\frac{\gamma_-}{\gamma_0} = 1.4$. La simulation (non-montrée ici) indique alors un facteur d'exaltation de **1200**, au lieu de 450 pour une seule fente[16]. Ce gain d'un facteur presque 3 en intensité locale est largement appréciable, d'autant que cette configuration géométrique est technologiquement plus facile à obtenir. Avec cette distance, la résonance antisymétrique est, au contraire, mauvaise ($EF \sim 350$) comparée à ce qu'elle peut être pour d petit. A titre de comparaison, un réseau d-périodique de telles fentes donnerait un EF de 1600 pour le mode Fabry-Perot fondamental (le premier plasmon de surface intervenant, lui, vers $2350cm^{-1}$). Ce gain est associé à un maximum d'interférences destructives entre les ondes radiées quand les cavités résonnent en phase, il n'est pas à attribuer aux plasmons du surface.

Le message est donc qu'en modifiant la distance de séparation d, on est capable de jouer de manière concommittante sur les lieux et les largeurs des modes propres du système, et ce, de façon contrôlée[17].

Ajoutons qu'à distance d constante, le fait de diminuer, cette fois, h, entraînerait automatiquement une augmentation générale des fréquences propres des modes de cavité, donc des valeurs de k. Cela changerait la donne, mais d'une toute autre manière, sur le décalage et les largeurs de résonances. Remarquons également que dans le cas où les cavités ont des *profondeurs un peu différentes*, nous couplons deux oscillateurs ayant des fréquences propres différentes. La symétrie du système est par conséquent rompue, *y compris en incidence normale.* Ce qui s'apparente alors au mode quasiment antisymétrique peut être excité à $\theta = 0$. Mais l'étude analytique n'ira pas plus loin, ici, bien qu'un certain nombre de choses puissent être établies sans trop de difficulté. Enfin, notons qu'étant donné le fort rapport d'aspect w/h des cavités sub-longueur d'onde, l'influence de la largeur w sera toujours bien moindre que celle de h.

[16] Simulations en incidence normale, en tenant compte de l'impédance de surface.

[17] Cet ensemble d'observations n'ont pas été l'objet de l'article [3], faute de place, mais seront publiées dans un futur proche.

4.5 Contrôle de la localisation de la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde

Nous nous intéressons maintenant aux conditions optimales d'exaltation de la lumière au sein d'un système à deux cavités sub-longueur d'onde. Le mode propre antisymétrique, on l'a vu, est celui dont la résonance est, de loin, la plus fine et la plus intense, si les cavités sont fortement couplées en champ proche. Plaçons-nous donc dans le cadre où $\boxed{kd < 1}$.

On se rappelle que le mode $U_- = [1, -1]$:

1. est excité par une faible part du champ incident ($\sim (kd)^2 \times |H_0|^2$).
2. est systématiquement pertubé par le mode symétrique (dont la largeur de résonance est grande).
3. nécessite une incidence oblique ($\theta \neq 0$) qui dissymétrise la réponse spectrale du doublet de fentes.

Pour stabiliser le système et favoriser l'excitation du mode (-), l'idée consiste à faire intervenir une *deuxième onde incidente*, polarisée TM et de même fréquence que la première, arrivant cette fois avec un angle $-\theta$ par rapport à la normale (onde conjuguée), comme le montre la Figure 4.12. On introduit en outre une éventuelle différence de phase $\boxed{\phi}$ entre les deux ondes incidentes. Cette différence de phase géométrique constitue un nouveau paramètre libre qui va permettre de construire le champ excitateur désiré.

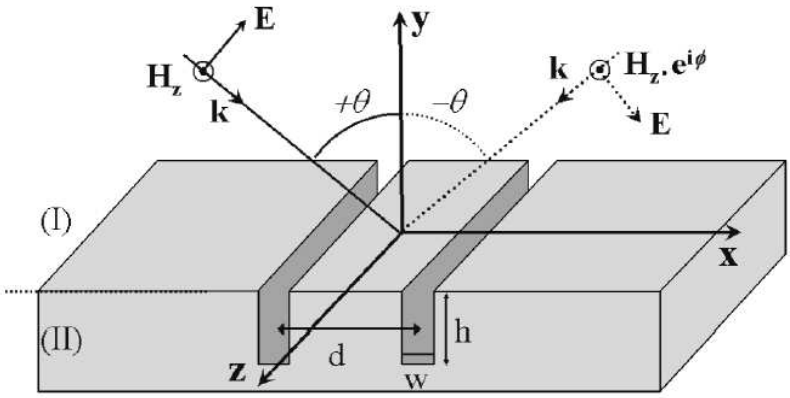


FIG. 4.12 – Schéma du système soumis à l'excitation de deux ondes conjuguées, l'une arrivant avec un angle θ, l'autre arrivant avec un angle $-\theta$ et un déphasage arbitraire ϕ par rapport à la première.

Par convention, ϕ est la différence de phase de la deuxième onde par rapport à la première, et se trouve parfaitement définie au point d'origine O[18]. Le système bifente est alors soumis au champ incident total

[18]La définition de ϕ dépend de la représentation du trièdre direct (k, E, H_z) de l'onde conjuguée :

$$H_z^{inc}(x,y) = [e^{ik\sin\theta x} + e^{i(\phi - k\sin\theta x)}]e^{-ik\cos\theta y}$$

Par linéarité des équations de Maxwell, les coefficients des champs internes aux cavités deviennent[19]

$$A_{n=1,2} = [\frac{\cos(\phi/2)}{e_+} + (-1)^n \tan(\varphi)\frac{\sin(\phi/2)}{e_-}] \cdot \frac{\cos(\varphi)}{\sin(kh)} e^{i(kh+\phi/2)} V_0 \qquad (4.7)$$

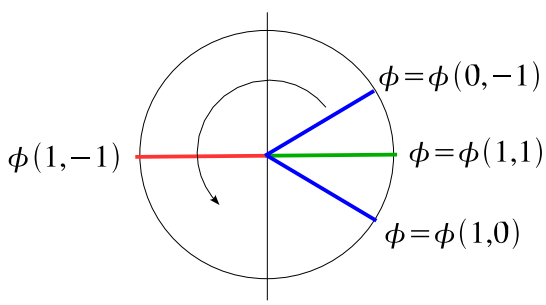
On rappelle que $\varphi = \frac{kd}{2}\sin\theta$ (à différencier de ϕ). Les valeurs propres e_+ et e_- sont restées inchangées. Seul le terme situé entre crochets nous intéresse ici.

L'analyse rapide des $A_{n=1,2}$ confirme qu'il nous est désormais possible de jouer, via ϕ, sur les combinaisons (excitations) des deux modes propres, pour générer de nouveaux arrangements dans la localisation de la lumière. En faisant varier continûment la différence de phase géométrique sur tout l'intervalle $[0; 2\pi]$, on peut rencontrer une succession d'états dont certains se révèlent remarquables.

4 états majeurs du système, que nous allons coder par (1,1), (1,-1), (1,0) et (0,-1), vont retenir en particulier notre attention.

- (1,1) (respectivement (1,-1)) correspond au cas où le système résonne *exclusivement (ou purement)* dans le mode propre symétrique (resp. antisymétrique).

- (1,0) (respectivement (0,-1)) correspond au cas où *seule la cavité 1 (resp. 2) est allumée* (*i.e.* résonne).



En guise d'illustration, on peut représenter le diagramme des états du système par le cercle trigonométrique ci-contre.

4.5.1 Obtention de résonances symétrique et antisymétrique pures

Considérons l'équation(4.7) de la section précédente. On voit qu'en prenant $\boxed{\phi = 0}$, on obtient directement $\boxed{A_1 = A_2} \sim \frac{\cos(\phi/2)}{e_+}$, quelle que soit la fréquence et les angles

si on avait pris, pour cette dernière, $\vec{E}$ dirigé vers les $y > 0$, un terme de phase π supplémentaire interviendrait dans son expression (cela ne change pas fondamentalement le problème)

[19] Il n'est pas nécessaire de refaire les calculs : il suffit d'additionner les coefficients obtenus en page 65 pour une onde incidente à θ, et une onde à $-\theta$ déphasée de ϕ.

d'incidence $\pm\theta$ des ondes conjuguées. L'état symétrique est donc généralisé sur tout le spectre[20], c'est-à-dire que les cavités sont toujours en phase. A la fréquence propre ω_+, on obtiendra par conséquent une résonance (1,1) *pure*, ce qu'illustre la Figure 4.13.[21]

Pour $\boxed{\phi = \pi}$, on obtient exactement $\boxed{A_1 = -A_2} \sim -\frac{\sin(\phi/2)}{e_-}$, et ce, quelle que soit la fréquence. On a alors un mode Fabry-Perot antisymétrique, généralisé sur tout le spectre (pourvu, bien sûr, que l'angle θ soit *non-nul*). Les cartes de champ de la Figure 4.13 montrent l'obtention de la résonance pure (1,-1) à la fréquence propre ω_-. Une excitation optimale de cette résonance peut être obtenue à très grand angle d'incidence, puisqu'alors son excitation augmente, comme on l'a vu dans les simulations numériques et dans l'étude analytique (équation 4.6). A $\theta \approx 80^o$ par exemple, on obtient un facteur d'exaltation $\boxed{EF \sim 10^4}$.

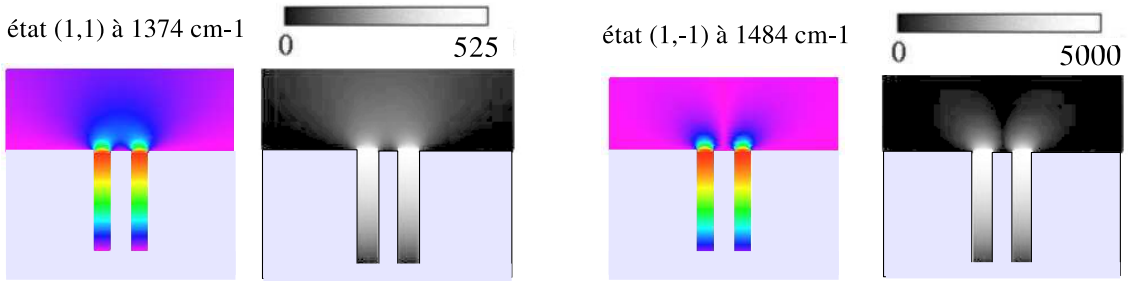


FIG. 4.13 – (couleurs) Cartographie spatiale de l'intensité du champ électrique E_x normalisé, dans les états résonnants purs (1,1) et (1,-1), à $\theta = 45^o$. Pour chaque paire de cartes : à droite, contraste de luminosité avec l'échelle de l'exaltation ; à gauche, vision en nuances colorées (maximum en rouge).

Le procédé d'incidence à deux ondes conjuguées permet donc de "désolidariser" l'excitation des modes propres sur toute la gamme fréquentielle qui nous intéresse. Les spectres de réponse obtenus en Figure 4.14 pour $\phi = 0$ et $\phi = \pi$ sont explicites :

- Lorsque $\phi = 0$, on a parfaitement *symétrisé le problème*. Les cavités "voient" toujours le même champ excitateur ($V_1 = V_2$). Le mode (-) ne peut donc jamais être excité, et on obtient exclusivement la résonance en phase.

- Lorsque $\phi = \pi$, une des cavités voit un champ excitateur qui est exactement l'opposé de l'autre ($V_1 = -V_2$). *Seule* la résonance (-) peut apparaître : on s'affranchi ainsi du "bruit de fond" que constituait le large mode (+), pour n'avoir qu'une fine résonance antisymétrique, rigoureusement identique pour les deux fentes (stabilisation).

[20] du moins, dans la gamme spectrale où nos calculs sont valides.

[21] *N.B. :* Etant donné que les champs incidents *interfèrent* en tout point de l'espace, la normalisation des champs électriques E_x sera faite par rapport au champ d'*une seule* onde incidente (la somme des intensités des deux champs incidents vaut 2, mais l'intensité de la somme des amplitudes n'est, elle, pas définie de manière absolue ; notamment quand $\phi = \pi$, le flux incident, juste au niveau des embouchures des cavités, est très faible, si bien que la normalisation par rapport à ce flux conduirait à des divergences). Les intensités obtenues suivant cette convention sont d'emblée plus fortes par rapport au cas de l'incidence à 1 onde, car on envoie 2 fois plus plus de flux.

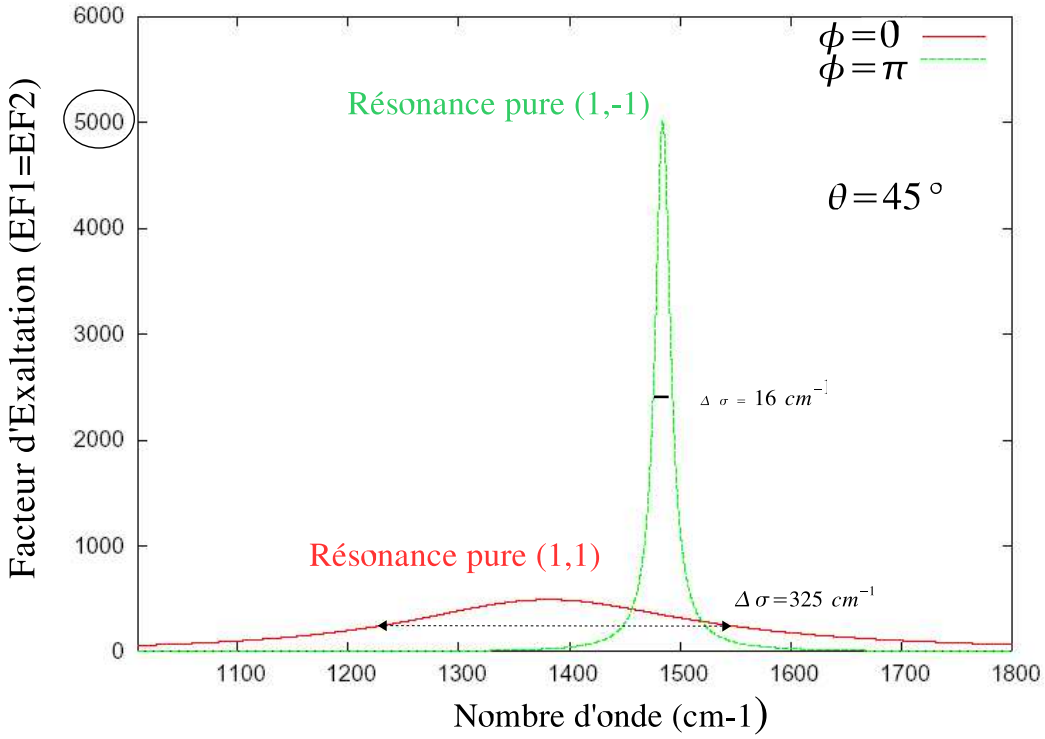


FIG. 4.14 – Obtention de modes propres *purs* avec 2 ondes incidentes ($\theta = 45^o$) : spectres du facteur d'exaltation des cavités ($EF_1 = EF_2$) quand la différence de phase entre les deux ondes conjuguées vaut $\phi = 0$ (seul le mode $[1, 1]$ est excité) et $\phi = \pi$ (seul le mode $[1, -1]$ est excité).

4.5.2 Allumage sélectif d'une cavité : commutateur optique

Reste à savoir s'il est possible, grâce à l'incidence à deux ondes, de combiner les modes propres du système de sorte que

$$\begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \end{bmatrix} \propto \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} \quad \text{ou} \quad \begin{bmatrix} 0 \\ -1 \end{bmatrix}$$

Autrement dit, peut-on (et comment) *éteindre une* des cavités dans la zone même de résonance ? Pour annuler (4.7), on voit aisément que le paramètre ϕ doit répondre à l'équation suivante :

$$\cot(\phi/2) = \mp(\frac{e_+}{e_-})\tan(\varphi) \quad \text{avec} \quad \begin{cases} \text{le signe - pour l'état } (A_1, A_2) = (1, 0) \\ \text{le signe + pour l'état } (A_1, A_2) = (0, -1) \end{cases} \tag{4.8}$$

Une telle condition n'a de sens que si l'équation est <u>réelle</u>, ce qui est *effectivement possible*, mais à une fréquence très spécifique, qu'on conviendra d'appeler fréquence d'extinction, notée ω_{ext}. Cette fréquence est telle que :

$$\Im(\tfrac{e_+}{e_-}) = 0 <=> \omega(\gamma_+ - \gamma_-) = (\gamma_+\omega_- - \gamma_-\omega_+) \text{ soit } \boxed{\omega_{ext} = \omega_- + \Delta\tfrac{\gamma_-}{\gamma_+}}$$

C'est donc une pulsation *indépendante* de l'angle d'incidence, et très proche de ω_- dans le cas d'une configuration fortement sub-longueur d'onde ($\frac{\gamma_-}{\gamma_+} << 1$).

A la fréquence d'extinction, l'équation (4.8) donne deux phases spéciales ϕ, notées $\phi_{(1,0)}$ et $\phi_{(0,-1)}$, permettant d'obtenir les états $(1,0)$ et $(0,-1)$, c'est-à-dire d'éteindre ***complètement*** une des deux cavités tandis que l'autre, pourtant très voisine, reste résonnante. On peut montrer en outre que ces phases vérifient $\phi_{(1,0)} = -\phi_{(0,-1)}$. Notons que les phases d'extinction dépendent de l'angle θ.

Il s'agit donc de conditions d'incidence assez subtiles. La fente qui reste seule allumée a alors un coefficient de champ

$$|A| \approx |\frac{2\cos(\phi/2)}{\Delta/2 + i\gamma_0/2}\cos(\varphi)|$$

On peut montrer que pour $kd << 1$, en métal parfait, $\Re(\frac{e_+}{e_-}) \approx 2(2/kd)^2$, ce qui donne la phase $\phi \approx \mp 2\arctan(\frac{k_0 d}{4\sin\theta})$. Cette formule approximative n'est pas à appliquer (la meilleure façon de trouver précisément les phases d'extinction est de faire appel à une représentation graphique des facteurs d'exaltation en fonction de ϕ), mais indique son sens d'évolution en fonction de l'angle θ. On a donc plutôt intérêt à travailler à grand angle d'incidence, de façon à réduire la valeur des phases d'extinction et, par conséquent, à maximiser l'allumage de la cavité ($|A|^2$).

Dans notre exemple de référence, la fréquence d'extinction où l'effet de commutation $(1,0) \longleftrightarrow (0,-1)$ est opérationnel vaut $\omega_{ext} = 1489cm^{-1}$ (on rappelle que $\omega_- = 1484cm^{-1}$). Pour $\theta = 45^o$, on trouve $\phi_{(1,0)} = -\phi_{(0,-1)} = -33^o$ (voir la détection sur le graphe des phases en Figure 4.15).

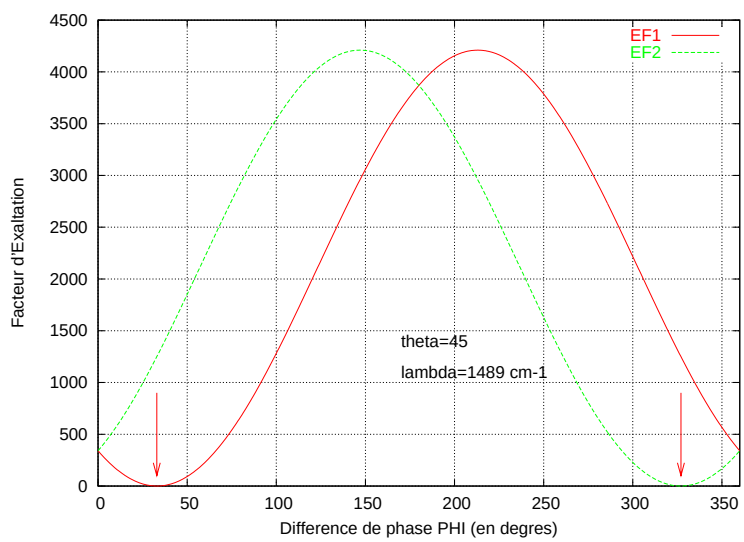


FIG. 4.15 – Diagramme des facteurs d'exaltation $EF_{i=1,2}$ du système bi-fente, en fonction de la différence de phase ϕ entre les deux ondes incidentes, à la fréquence d'extinction $1/\lambda_{ext} = 1489cm^{-1}$ et à $\theta = 45^o$: les phases d'extinction $\phi_{(1,0)}$ et $\phi_{(0,-1)}$ sont obtenues quand l'un ou l'autre des EF_i s'annule (valeurs fléchées).

Le contrôle de la localisation de la lumière, à l'échelle sub-longueur d'onde, est clairement illustré par les cartes de champ de la Figure 4.16. Elles montrent la configuration du système à la fréquence ω_{ext}, pour l'une et l'autre phase ϕ d'extinction. On peut éteindre la cavité de notre choix, bien que les fentes soient séparées d'une distance ici 13 fois plus petite que la longueur d'onde d'excitation ($\lambda = 6.7\mu m$).

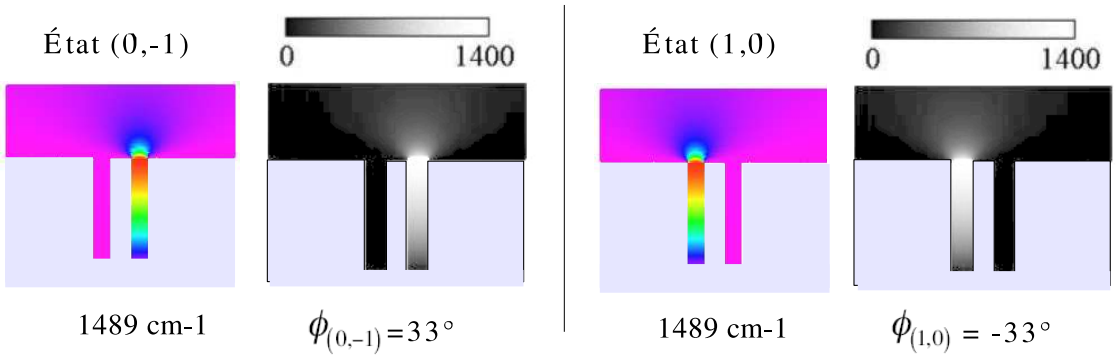


FIG. 4.16 – Cartographie spatiale de l'intensité normalisée du champ électrique E_x, dans les états (1,0) et (0,-1), à $\theta = 45^o$ et à la fréquence d'extinction $1490cm^{-1}$. Pour chaque paire de cartes : à droite, contraste de luminosité avec l'échelle de l'exaltation ; à gauche, vision en nuances colorées (maximum en rouge).

Enfin, la Figure 4.17 illustre le spectre des facteurs d'exaltation EF_1 et EF_2 lorsque les deux ondes incidentes sont déphasées de $\phi = \phi_{(0,-1)} = 33^o$. Au passage de la fréquence d'extinction $1489cm^{-1}$, il arrive exactement ce qu'on prédit analytiquement, à savoir l'extinction totale de la cavité 1. Du fait de son extinction, l'autre cavité est automatiquement "libérée" d'un couplage radiatif : il n'y a alors plus qu'un moment dipolaire résonnant, et on retrouve une exaltation soudainement plus grande, en fait, *du même ordre de grandeur que celle d'une fente isolée*[22]

Notons d'ailleurs que les champs H_1 et H_2 dans les cavités sont en *quadrature de phase* ($\pi/2$) lorsque le système est dans les états $(1,0)$ et $(0,-1)$, comme si, effectivement les moments dipolaires effectifs était orthogonaux entre eux, l'un d'eux devenant d'amplitude obligatoirement nulle, étant donné la seule direction possible des moments $((\rightarrow,\otimes)$ ou $(\otimes,\leftarrow))$.

A la différence des états $(1,1)$ et $(1,-1)$ pour lequels on a construit un champ incident pair ou impair au niveau des fentes, l'extinction d'une cavité *ne signifie pas* qu'on a créé un champ incident *nul* au niveau de son embouchure. C'est la *résultante* du champ incident *et* du champ diffusé par la cavité voisine qui l'est.

Plus largement, il faut bien comprendre que l'on peut projeter le système dans tout un panel d'états, dans une zone où il n'adopte normalement pas des comportements aussi purs avec une seule onde incidente. On peut se trouver, par exemple, dans la zone

[22] A un facteur 4 près du fait, ici, de l'incidence à deux ondes.

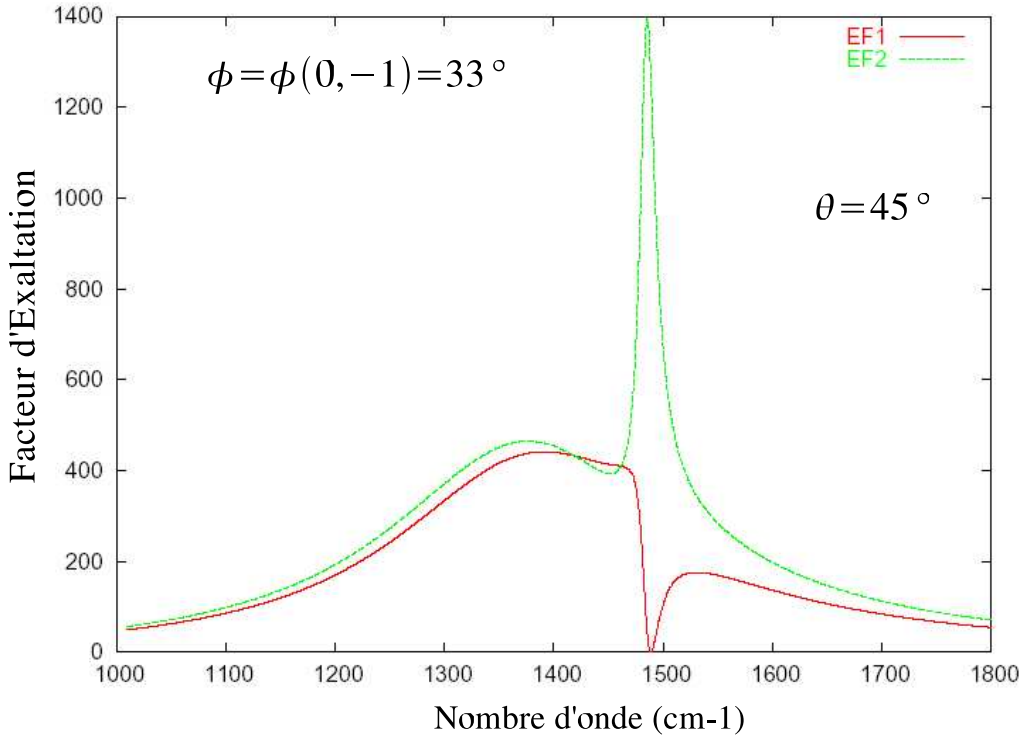


FIG. 4.17 – Réponse spectrale du système lorsque la phase φ est calée sur la phase d'extinction de la cavité 1. Il suffit d'intervertir les courbes quand on passe à $\varphi = \varphi(1,0) = -33^o$. En réalité, quand $EF_1 = 0$, $EF_2 = 1255$ (il y a un léger décalage entre la cime du pic et le point d'annulation).

spectrale de la résonance (-), et néanmoins, induire d'autres réponses électromagnétiques (dont la "remise en phase") en réglant seulement la phase ϕ, *i.e.* en créant un champ excitateur approprié en surface.

4.5.3 Perspectives

La détermination des caractéristiques des modes propres du système bi-fente, et l'introduction d'un paramètre libre astucieux (phase ϕ) nous a permis de montrer qu'il est (théoriquement) possible de sélectionner le résonateur métallique, quand bien même les cavités sont séparées d'une distance au moins 10 fois plus petite que la longueur d'onde excitatrice. On travaille ainsi à une échelle bien en-deça de la classique limite de diffraction, dépassant, d'une certaine manière, le critère de Rayleigh.

L'effet de commutation fonctionne à une fréquence spécifique, pour tout angle d'incidence fixé (sauf $\theta = 0$ et $\theta = 90^o$). Ce contrôle de la localisation de la lumière s'opère ici en champ ***lointain***, mais a exigé au préalable une bonne connaissance de ce qui peut se passer en champ proche. En pratique, la différence de phase géométrique entre les deux ondes incidentes ϕ peut être ajustée par l'introduction d'un chemin optique variable pour l'une des deux ondes incidentes. Ce système est foncièrement une interface entre les electrons du métal et la lumière incidente ; outre les aspects physiques fonda-

mentaux dégagés dans ce chapitre, le contrôle des exaltations locales du champ peut amener à quelques applications directes pour l'opto-électronique (voir la Figure 4.18).

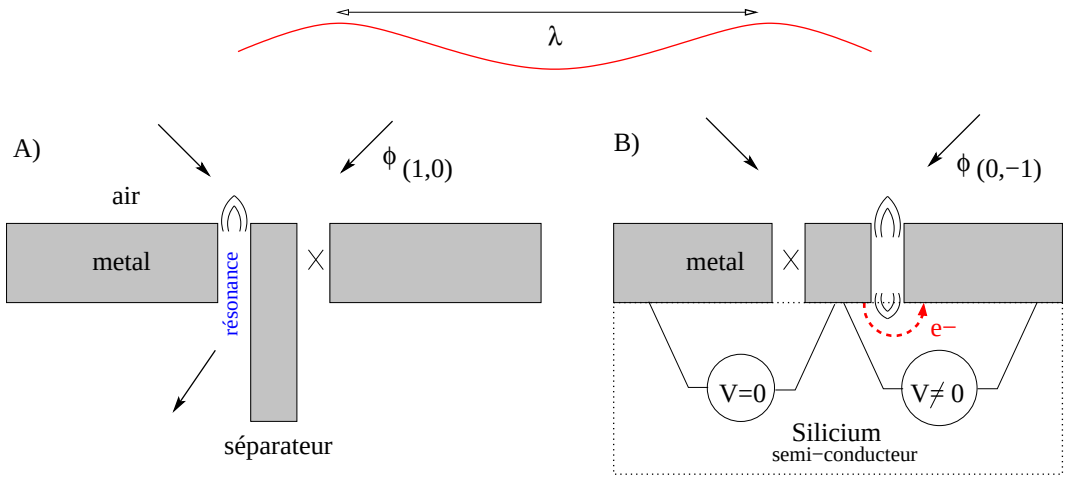


FIG. 4.18 – A) Adressage de la lumière à travers l'une ou l'autre fente sub-longueur d'onde (ici, la première), grâce à l'excitation par deux ondes déphasées. B) Passage contrôlé d'un courant électrique entre deux portions métalliques adjacentes, à travers un substrat semi-conducteur : l'allumage sélectif d'une des fentes (la deuxième ici) excite le silicium situé au juste fond (courant photo-induit).

Les conclusions issues de l'étude du système à deux cavités sont tout à fait transposables au problème d'un couple de fentes en transmission. Des travaux complémentaires ont été faits à ce sujet, mais ne figurent pas dans ce rapport afin d'en limiter le volume. Soulignons juste que la résonance du mode propre antisymétrique, du fait de sa nature typiquement quadrupolaire (peu radiative), *transmettra relativement peu* de lumière. Une intense résonance, accompagnée de faibles transmission et réflexion, est justement le signe d'un piégeage efficace et quantitatif de la lumière dans les motifs sub-longueur d'onde. Par contre, la résonance en phase des fentes, couplées en champ proche, conduira à une transmission maximale, l'autre problème étant le caractère *non-directionnel* du champ transmis. Il faut aussi noter que les études de systèmes en transmission, dans la littérature, sont trop souvent menées en incidence normale, alors que l'incidence oblique révèle d'autres comportements, parfois plus riches (on pense à l'excitation de modes antisymétriques, par exemple).

4.6 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons étudié le comportement électromagnétique d'un couple de rainures sub-longueur d'onde, en nous intéressant particulièrement au cas où elles sont séparées d'une distance très sub-longueur d'onde. A travers les simulations numériques et une approche analytique approfondie, on a pu montrer que le couplage en champ proche des deux cavités provoque la levée de dégénérescence du mode Fabry-Perot de chaque cavité individuelle, en deux modes propres :

- un mode Fabry-Perot symétrique, où les champs des deux cavités sont en phase, et qui conduit à une large résonance forcée.

- un mode Fabry-Perot antisymétrique où les champs sont en oppositon phase, associé à une fine et intense résonance. Ce mode n'est excité qu'en incidence oblique et conduit à des facteurs d'exaltation de l'ordre de 10^3 typiquement.

L'analogie aux dipôles oscillants nous a permis de comprendre les propriétés spectrales de ces résonances :

- Le mode (+) symétrique est associé à un fort moment dipolaire, d'où d'importantes pertes radiatives et une faible exaltation locale (couplage super-radiant)

- Le mode (-) antisymétrique, en revanche, possède un moment effectif quadrupolaire, peu radiatif, et associé, par conséquent, à un piégeage efficace de la lumière au sein des cavités (couplage sub-radiant).

Nous avons également mis en évidence la haute susceptibilité fréquentielle du système autour de la résonance fine, qui se traduit par de brutales variations dans la localisation de la lumière au niveau des fentes. Ce pourrait être un point clef dans la compréhension des phénomènes de *hot spot* sur des surfaces métalliques rugueuses.

Enfin, le recours à deux ondes incidentes, judicieusement déphasées, nous a permis d'exciter préférentiellement le mode symétrique ou le mode antisymétrique, et donc de contrôler quantitativement la localisation de la lumière, à une échelle largement sub-longueur d'onde (résonance pure du mode (+) ou (-), ou extinction de la cavité de notre choix). Ainsi, en termes d'application, les différents états du couple de fentes, notés $(1,0)$, $(1,1)$, $(0,1)$ et $(1,-1)$, obtenus par cette technique, amènent à penser le système comme un ***variateur optique sub-longueur d'onde*** de type binaire.

Les simulations théoriques ont été faites ici pour un métal noble (l'or) dans l'infrarouge, en considérant que le couplage des cavités ne s'effectue que par l'intermédiaire du champ externe. Néanmoins, sous un certain seuil de proximité (quelques épaisseurs de peau, à plus forte raison quand ε_m est faible en module), il faut tenir compte d'un effet tunnel non-négligeable dans le matériau séparant deux cavités (il existe, en quelque sorte, un "court-circuitage" des moments dipolaires effectifs). Pourvu qu'on diminue l'échelle spatiale du système bifente, les phénomènes de localisation de la lumière ont toute raison d'avoir lieu dans le domaine visible, mais les exaltations attendues, en particulier celle de la résonance *en opposition de phase*, seront contrecarrées par une plus grande absorption du métal dans ce domaine.

Pour finir, la mise en réseau du système bifente (deux cavités voisines par période) ne change pas fondamentalement les résonances de cavités, à ceci près que l'excitation du mode Fabry-Perot antisymétrique sera optimale à *petit* angle d'incidence (à plus grand angle, en effet, le plasmon de surface intervient). En prenant une période suffisamment grande, les simulations (non montrées) indiquent des pics d'exaltations supérieurs à deux cavités couplées en champ proche. Le contrôle de la localisation de la lumière peut être également envisageable, sous certaines conditions, j'en parle dans le chapitre de généralisation qui suit.

Bibliographie

[1] H.F.Shouten, et al, Phys.Rev.Lett. 94, 053901 (2005). "Plasmon-assisted two-slit transmission : Young's experiment revisited".

[2] A.N.Grigorenko, A.K. Geim, H.F. Gleeson, Y.Zhang, A.A. Firsov, I.Y. Khrushchev et J.Pertovic, Nature **438**, 335 (2005). "Nanofabricated media with negative permeability at visibles frequencies".

[3] J. Le Perchec, P. Quémerais, A. Barbara, and T. López-Ríos, Phys.Rev.Lett. **97**, 036405 (2006) "Controlling Strong Electromagnetic Fields at Subwavelength Scales"

[4] V.L. Lyuboshitz, *Sov. Phys. JETP (Journal of Experimental and Theoretical Physics)* **10**, 612 (1967).

[5] H.Morawitz, *Physical Review* **187**, number 5, 1792 (1969). "Self-Coupling of a Two-Level System by a Mirror"

[6] R.H.Dicke, *Physical Review*, volume **93**, number 1, p.99 (1954). "Coherence in Spontaneous Radiation Processes"

[7] J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, 3rd edn (New York : J.Wiley and Sons Inc., 1999).

Chapitre 5

Effets de localisation dans des structures plus complexes

En 1999, Grésillon *et al* [1] ont publié des résultats expérimentaux (relevés SNOM) metant en évidence de brutales fluctuations dans l'intensité du champ électromagnétique à la surface d'un dépôt d'or semi-continu sur substrat de verre (voir la Figure 5.1). Ces fortes concentrations d'énergie, sur des zones largement sub-longueur d'onde, ont été attribuées à la résonance de plasmons de surface très localisés. Les chercheurs ont également montré qu'en faisant varier la fréquence d'étude de seulement quelques nanomètres ($\lambda \sim 700nm$), la distribution spatiale du champ électromagnétique changeait complètement (les pics d'exaltation apparaissaient à d'autres endroits), ce qui prouvait la forte sensibilité du système aux paramètres d'excitation.

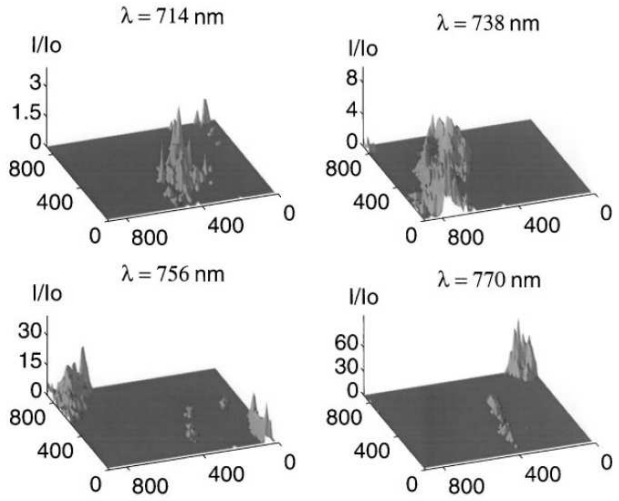


FIG. 5.1 – Images expérimentales par microscopie optique à champ proche (SNOM) d'une surface de verre recouverte de particules d'or au seuil de percolation, pour différentes longueurs d'onde (les coordonnées spatiales x, y sont en nm). On observe des pics d'exaltation du champ électromagnétique ("points chauds"), dont l'extension spatiale varie de quelques dizaines à quelques centaines de nm.

L'idée, dans ce Chapitre, est de donner des éléments de réflexion quant à l'étude du comportement électromagnétique d'un arrangement quelconque de N cavités sub-longueur d'onde (toujours en polarisation TM, et dans le cadre de la méthode modale restreinte). Il s'agit notamment de mettre en évidence *l'émergence de nouveaux modes de résonances quand on complexifie la corrugation métallique*, et d'en expliquer les raisons physiques. Autrement, dit, nous nous intéressons aux effets de confinement (piégeage) de la lumière *liés au caractère désordonné, ou non-symétrique*, de la structure prise dans son ensemble. Les observations théoriques trouveront un échos assez familier avec les expériences de Grésillon *et al* (sans que ce soit un problème équivalent).

Après une généralisation du formalisme modal, nous nous focaliserons sur l'exemple du triplet de cavités, et dégagerons, analytiquement et numériquement, un certain nombre de propriétés que ne possède pas le système bifente étudié au chapitre précédent. Cette étape étant franchie, nous aurons alors une vision plus approfondie de ce qui peut se passer dans un système plus complexe (le contrôle des exaltations locales de la lumière sera d'ailleurs étendu).

Il ne sera pas question d'analyser, au final, un vrai désordre de surface (ce qui constitue tout un sujet en soi), mais nous nous pencherons seulement sur les effets d'exaltations spécifiques aux réseaux "composés" (comprenant plusieurs cavités par période). Ces réseaux, qui peuvent amener à des arrangements "quasi-périodiques", constituent des modèles intermédiaires entre une structure périodique simple (parfaitement ordonnée) et une collection infinie de cavités réparties aléatoirement. Nous regarderons alors, à partir d'exemples simples, le lien direct qui existe entre la brisure de symétrie et le phénomène de localisation spontanée de la lumière. Enfin, nous donnerons la *preuve expérimentale* que de nouvelles résonances électromagnétiques se produisent bien dans les reseaux composés.

N.B. : Indépendamment de nous, une équipe de chercheurs argentins a étudié, théoriquement, la réponse optique des réseaux composés en transmission, et fait part, dans un article récent [2], de l'existence de "résonances de phase" très fines, mais l'origine physique du phénomène n'a pas été expliquée.

5.1 Equations modales pour une collection quelconque de cavités sub-longueur d'onde

Soit une collection de N rainures à profil rectangulaire, toutes colinéaires, situées et centrées respectivement aux abscisses $x_1, x_2, ..., x_N$, de largeurs sub-longueur d'onde $w_1, w_2, ..., w_N$, et de profondeurs $h_1, h_2, ..., h_N$. Le choix de l'origine des abscisses est tout à fait quelconque. Le système est soumis à une onde plane propagative polarisée TM, arrivant avec un angle d'incidence θ.

Dans le cadre des conditons aux limites déjà employées dans les deux chapitres précédents (*cf* page 36), et reprenant les mêmes notations des champs électromagnétiques (page 63), on montre sans problème que les coefficients complexes $A_{j\in[1,n]}$ des champs

intra-cavités (approximation unimodale valide) sont donnés par :

$$\forall j \in [1, N], \quad [1 + r_j - G_j(0)]A_j = V_j + \sum_{k \neq j} G_k(x_j - x_k)A_k \tag{5.1}$$

$$\text{Où} \quad r_j = \frac{1+Z}{1-Z} e^{-2ikh_j} \quad , \quad V_j = \frac{2\cos\theta}{\cos\theta + Z} sinc(\frac{kw_j \sin\theta}{2}) \cdot e^{ik\sin(\theta)x_j}$$

$$\text{et} \quad G_j(x) = \frac{w_j}{\lambda}(1+Z)(1-e^{-2ikh_j}) \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{sinc^2(kw_j u/2)}{\sqrt{1-u^2}+Z} e^{ikux} du$$

Si toutes les fentes sont identiques, alors $\forall j \neq i, G_j = G_i$. Les termes G_j sont des fonctions de couplage entre les résonateurs métalliques sub-longueur d'onde (couplage par l'intermédiaire du champ externe). Le couplage inter-cavités diminue quand la distance de séparation augmente : on a logiquement[1] $\lim_{x\to\infty} G_j(x) = 0, \forall j$. D'autre part, $G(0) = G(x_j - x_j)$ correspond à la rétroaction du champ produit par chaque résonateur de cavité avec lui-même. L'équation (5.1) traduit notamment que chaque fente est une source secondaire d'excitation pour ses voisines, en dehors du champ incident direct.

Le N-uplet $\{A_1, A_2, ..., A_N\}$ vérifie un système d'équations linéaires, équivalent à une équation matricielle du type $\boxed{\mathcal{M}\vec{A} = \vec{V}}$ où $\mathcal{M}$ est une matrice carrée, de rang N, caractéristique du système, et $\vec{V}$ le vecteur d'excitation (nul en l'absence d'onde incidente). $\mathcal{M}$ est symétrique *quels que soient les jeux de distances* inter-cavités si toutes les rainures sont identiques ($\forall j \neq i, G_j = G_i$)[2].

La distribution $R(Q)$ du champ réfléchi par la collection des N résonateurs vaut

$$R(Q) = R_{sp} \cdot \delta(Q - k\sin(\theta)) + \sum_{j=1}^{n} \frac{w_j}{\lambda}(1+Z)\frac{sinc(Qw_j/2)}{q+kZ} A_j(1-e^{-2ikh_j})e^{-iQx_j}$$

Avec $q = \sqrt{k^2 - Q^2}$ et $R_{sp} = \frac{\cos\theta - Z}{\cos\theta + Z}$.

Si la collection de rainures, dans son ensemble, est itérée *périodiquement*, il suffit de convoluer les intégrandes des G_j par un peigne de Dirac approprié (*cf* Chapitre 3, page 40), lequel traduit l'émission de la lumière, non plus sous forme diffusive, mais sous forme d'ordres diffractés discrets. Par exemple, pour un réseau D-périodique, ayant N cavités par période, les coefficients de réflexion R_n du réseau seront donnés par :

$$R_n = R_{sp} \cdot \delta_{n0} + (1+Z)\sum_{j=1}^{N} \frac{w_j}{D} A_j(1-e^{-2ikh_j}) \cdot \frac{sinc(kw_j\gamma_n/2)}{\beta_n + Z} e^{-ik\gamma_n x_j}$$

Avec, on le rappelle $\gamma_n = \sin\theta + n\frac{\lambda}{D}$ et $\beta_n = \sqrt{1-\gamma_n^2}$.

[1] On notera la propriété de parité $G(x) = G(-x)$.

[2] Dans un triplet de fentes équidistantes 2 à 2, par exemple, si les cavités 1 et 3 sont identiques la matrice $\mathcal{M}$ n'est pas symétrique diagonalement, mais possède une symétrie *centrale* (la matrice à la symétrie du système physique)

Exemple d'un triplet de cavités sub-longueur d'onde

$$\begin{bmatrix} [1+r_1-G_1(0)] & -G_2(x_2-x_1) & -G_3(x_3-x_1) \\ -G_1(x_2-x_1) & [1+r_2-G_2(0)] & -G_3(x_3-x_2) \\ -G_1(x_3-x_1) & -G_2(x_3-x_2) & [1+r_3-G_3(0)] \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \\ A_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} V_1 \\ V_2 \\ V_3 \end{bmatrix}$$

Si par exemple, la cavité d'indice 1 est éloignée à l'infini, on doit trouver les valeurs propres du couple de fentes {2,3}, et celle de la fente 1 isolée. Or justement, $\forall j, x_1 \to \infty => G_j(x_2-x_1) = 0 = G(x_3-x_1)$: l'étude conjointe des 2 sous-sytèmes (bifente+fente isolée) reviennent bien à l'équation matricielle suivante :

$$\begin{bmatrix} [1+r_1-G_1(0)] & 0 & 0 \\ 0 & [1+r_2-G_2(0)] & -G_3(x_3-x_2) \\ 0 & -G_2(x_3-x_2) & [1+r_3-G_3(0)] \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \\ A_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} V_1 \\ V_2 \\ V_3 \end{bmatrix}$$

Revenons au cas général. Les cavités sub-longueur d'onde étant des résonateurs de Fabry-Perot, notre collection finie de rainures est en fait un système à **N oscillateurs couplés**, qui présente de manière générale *N modes propres collectifs*, dont il n'est pas permis, cependant, de dire qu'ils sont tous distincts (la dégénérescence éventuelle dépendra de la symétrie du problème). Si les cavités sont toutes *identiques*, il semble qu'il soit toujours possible de diagonaliser la matrice $\mathcal{M}$ de rang N sous la forme :

$$\begin{bmatrix} (1+r-G(0))-\Gamma_1 & 0 & 0 \\ 0 & ... & 0 \\ 0 & 0 & (1+r-G(0))-\Gamma_N \end{bmatrix}$$

Où $[1+r-G(0)]$ est le terme propre à la cavité isolée, et chaque Γ_j, directement lié à une configuration de couplage, est l'agent générateur de ce qui devient l'un des N modes collectifs ($\Gamma = 0$ s'il n'y a qu'un résonateur). Chaque terme diagonal est une valeur propre de $\mathcal{M}$. En effectuant un développement asymtotique de chacun d'eux autour de leur fréquence d'annulation (ou presque), on fait apparaître l'ensemble des pôles pour lesquels le système entre en résonance.

On l'a très bien vu dans le Chapitre 4 pour une paire de fentes (page 71), peu importe la distance qui les séparait. Pour un nombre supérieur de cavités identiques, les choses se compliquent très sérieusement quand les jeux de distances sont quelconques. Je suis quand même arrivé à traiter, à la main, le cas $n = 3$, c'est-à-dire celui du triplet de fentes. L'exposé figure en Annexe, page 235, et pourra peut-être servir à l'étude de trois moments dipolaires en interaction (problème calculatoire similaire), si on l'on veut étendre analytiquement l'analogie faite au Chapitre précédent (étude ne figurant pas dans ce rapport).

Notons qu'aucune des valeurs propres ne dépend intrinsèquement de l'angle d'incidence (ce qui n'est pas le cas des réseaux périodiques à plusieurs cavités par période). En revanche, l'*excitation* des différents modes dépendra fortement de θ.

Il ne saurait être question d'effectuer un catalogage exhaustif des différents cas rencontrés lorsqu'on augmente progressivement le nombre de cavités en interaction. Le but, ici, est de donner les clefs essentielles pour saisir les nouvelles possibilités de localisation (et d'exaltation) de la lumière dans les systèmes à structures complexes. Si le passage d'une cavité isolée à 2 cavités couplées en champ proche, demande de passer un certain cap dans la compréhension des résonances électromagnétiques, le passage à $N = 3$ cavités en exige également un. Par contre, une fois ce dernier problème traité, on imaginera beaucoup plus facilement ce qu'il peut se passer pour $N > 3$.

5.2 Le triplet de cavités équidistantes

Dans cette section, nous nous contenterons d'étudier un système *symétrique* à 3 cavités sub-longueur d'onde. Les gravures rectangulaires sont de **mêmes dimensions, et équidistantes deux à deux** : $\boxed{\forall j \in [1,3],\, G_j = G}$, $h_j = h$, $w_j = w$ et $r_j = r$. Cette simplification allège nettement notre investigation. On notera $\boxed{d}$ la distance qui sépare deux à deux les trois fentes, comme le montre le schéma de la Figure 5.2.

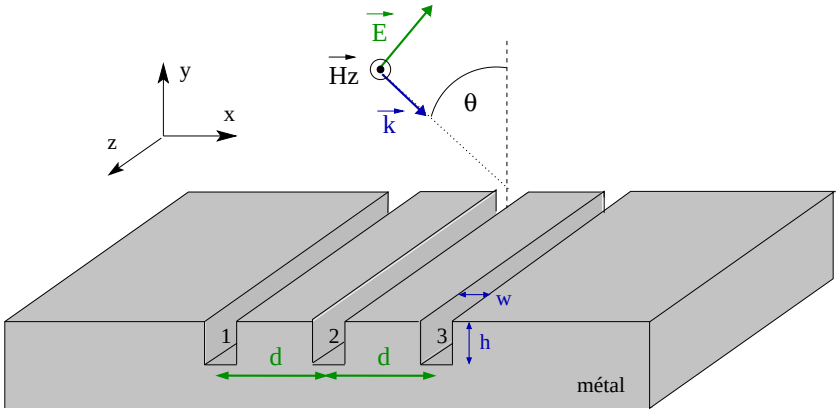


FIG. 5.2 – Schéma du triplet de cavités sub-longueur d'onde ($kw << 1$), équidistantes deux à deux. Le distance d est quelconque. Les cavités sont numérotées de 1 à 3 en allant vers les x croissants.

5.2.1 Modes propres du système

Reprenant le formalisme introduit précédemment, la matrice caractéristique $\mathcal{M}$, de rang $N = 3$, est relativement simple (elle a été prise en exemple dans la section précédente) et l'on peut en chercher le spectre des *valeurs propres*, notées $\boxed{e_{i=1,2,3}}$, associées aux *vecteurs propres*, notés $\boxed{U_{i=1,2,3}}$. Les expressions générales sont alors :

$$\begin{cases} e_1 = [1 + r - G(0)] - \frac{1}{2}[G(2d) + \sqrt{G(2d)^2 + 8G(d)^2}] \\ e_2 = [1 + r - G(0)] + G(2d) \\ e_3 = [1 + r - G(0)] - \frac{1}{2}[G(2d) - \sqrt{G(2d)^2 + 8G(d)^2}] \end{cases}$$

$$\begin{cases} U_1 = [1; \quad \frac{1}{2}[\sqrt{(\frac{G(2d)}{G(d)})^2 + 8} - \frac{G(2d)}{G(d)}]; \quad 1] \\ U_2 = [1; \quad 0; \quad -1] \\ U_3 = [1; \quad -\frac{1}{2}[\sqrt{(\frac{G(2d)}{G(d)})^2 + 8} + \frac{G(2d)}{G(d)}]; \quad 1] \end{cases}$$

Malgré la symétrie du système matériel, le travail analytique est ardu (ne parlons pas du problème à 4 fentes ou plus...). Les formulations ci-dessus indiquent que les modes propres ne sont pas dégénérés *a priori*, et dépendent sensiblement de la distance d.

Cas du couplage en champ proche

$G(x)$ étant une intégrale complexe, il semble difficile de mettre en exergue les caractéristiques des 3 modes propres. On peut toutefois, dans le cas du couplage en champ proche $\underline{kd << 1}$, et en métal parfait, *tenter d'estimer* les parties imaginaires des valeurs propres $e_{i=1..3}$, c'est-à-dire les largeurs spectrales $\boxed{\gamma_j}$ de chaque mode.

Cette estimation recourt à l'approximation suivante $\sqrt{G(2d)^2 + 8G(d)^2} \approx 3G(d)$. On obtient alors :

$$\begin{array}{ll} U_1 = [1;1;1] & \gamma_1 \approx 3\gamma_0 \\ U_2 = [1;0;-1] & \gamma_2 \approx \gamma_0 (kd)^2 \\ U_3 = [1;-2;1] & \gamma_3 \approx \frac{\gamma_0}{2}(kd/2)^2 \end{array}$$

Où γ_0 est l'amortissement radiatif d'une cavité *isolée*, lors de la résonance Fabry-Perot. Ces résultats (approximatifs) sont très parlants physiquement et, à la limite, presque attendus. Pour les expliquer, reprenons, dans la lignée du Chapitre 4, la notion de moment dipolaire effectif. On rappelle qu'un tel moment apparaît au niveau des embouchures de cavités lors des résonances de type Fabry-Perot.

1. Le premier mode propre $U_1 = [1;1;1]$ traduit une configuration *symétrique*, où les moments effectifs dipolaires des 3 cavités rayonnent *en phase* ($\rightarrow\rightarrow\rightarrow$ schématiquement), d'où une largeur spectrale 3 fois supérieures à γ_0. A cette résonance, chaque cavité devrait engranger la même quantité de lumière.
2. Le deuxième mode propre, $U_2[1;0;-1]$, est *antisymétrique* ($\rightarrow 0 \leftarrow$), et correspond à une configuration où la cavité centrale est *éteinte* tandis que les cavités extrêmes résonnent *en opposition de phase*. On a alors un système bi-fente de taille $2d$, d'où une largeur de $(2kd/2)^2 = (kd)^2$. A la résonance, les cavités 1 et 3 contiendraient la même quantité de lumière, avec un déphasage π. *Ce mode ne pourra être excité en incidence normale, et sera maximum à grand angle θ.*
3. Le 3ème mode $U_3 = [1;-2;1]$ est *pseudo-symétrique* ($\leftarrow\longrightarrow\leftarrow$, ou vu autrement $\leftarrow\rightarrow + \rightarrow\leftarrow$), et s'apparenterait à l'apparition de 2 moments quadrupolaires effectifs. La largeur de résonance devient moitié celle qu'on a pour un seul couple de cavités résonnant antisymétriquement. En terme d'énergie, la cavité centrale emmagazine presque *2 fois plus de lumière que ses voisines*, avec un déphasage π par rapport à celles-ci. *D'emblée, ce mode sera excité au maximum en incidence normale.*

Les vecteurs propres U_j ont été obtenus en prenant grossièrement $\frac{G(2d)}{G(d)} \approx 1$, juste pour l'image.[3] Seul le mode propre U_2 est exact (et fixe). Pour les simulations présentées en section suivante, on reprendra les formules pratiques des U_i ci-dessus, même approximatives, pour garder en tête une image visuelle de chaque mode propre.

Enfin, on voit que, par couplage en champ proche, il existe un mode propre (U_3) dont la résonance attendue serait *encore plus fine* que celle du mode (-) antisymétrique rencontré dans le système bifente. Cette résonance correspond à des localisations de la lumière plus complexe à l'échelle sub-longueur d'onde. C'est ce que nous allons effectivement voir dans les simulations qui suivent.

[3]En fait, les simulations tendent à suggérer que lorsque $kd << 1$, $U_1 \approx [1; \sqrt{2}; 1]$ et $U_3 \approx [1; -\sqrt{3}; 1]$.

5.2.2 Simulations pour le couplage en champ proche

Afin que le lecteur puisse faire des comparaisons aisées avec les simulations présentées dans le Chapitre 4 (section 4.2.3 page 66), les paramètres du système trifente seront les suivants : $h = 1.5\mu$mn, $w = 200$nm et $d = 500$nm (équidistance). Le métal sera encore une fois de l'or, et nous étudierons la réponse optique dans l'infrarouge ($\lambda \in [5\mu m, 10\mu m]$). Les trois cavités sont donc couplées en champ proche. La Figure 5.3 montre les spectres des intensités du champ électrique E_x (normalisé au champ électrique total incident), à l'embouchure de chaque cavité du triplet, en incidence normale, et en forte incidence oblique ($\theta = 75^o$). Les calculs ont été faits dans le cadre de la méthode modale restreinte exposée au Chapitre 3.

En incidence normale, on a l'excitation des modes symétriques $U_1 = [1, 1, 1]$ (très large, situé autour de $1350cm^{-1}$) et $U_3 = [1, -2, 1]$ (pic très fin situé à $1501cm^{-1}$, large de $12cm^{-1}$), ce dernier conduisant à des exaltations locales de l'intensité du champ électrique avoisinant 1730 pour la cavité centrale, et 630 pour les 2 autres.

En incidence oblique, le mode antisymétrique $U_2 = [1, 0, -1]$ est excité. Il correspond à une fréquence ($1445cm^{-1}$) et à une largeur spectrale ($35cm^{-1}$) intermédiaires aux 2 autres résonances. Il conduit à des exaltations de 1300 à 1540 pour les cavités extérieures (la dissymétrie provient de l'incidence oblique) et 95 pour la cavité centrale.

Alors que la résonance U_3 est presque pure en incidence normale, le mode U_2 est perturbé par l'excitation des modes symétriques. On observe enfin que la résonance U_3 perd en intensité à angle croissant : cela donne donc un effet de bascule entre les deux modes fins.

Les cartographies locales du champ magnétique, en bas de la Figure 5.3, permettent d'identifier clairement les résonances fines du système et confirment les répartitions d'énergie que présupposaient les vecteurs propres écrits en section précédente. On a une complexification évidente de la localisation de la lumière, et ce, à une échelle largement sub-longueur d'onde, puisque $\lambda > 6\mu$m. L'étude analytique détaillée en section précédente est donc parfaitement illustrée par cet ensemble de simulations.[4]

[4]Remarque : Les largeurs γ_i des 3 modes propres, calculées analytiquement en page 98, correspondaient au cas du métal parfait. Ce sont des largeurs typiquement "structurelles" (indépendantes de la constante diélectrique). Les simulations (avec l'impédance de surface) sont qualitativement en accord, mais pas quantitativement pour les modes fins. La raison physique est simple : plus un mode est fin en métal parfait, plus il sera sensible à la moindre absorption prise en compte en passant au métal réel. Autrement dit, la finesse "structurelle" n'est pas une grandeur pertinente si elle est inférieure à celle donnée par l'absorption du métal. Le mode très large de type $[1; 1; 1]$ est presque insensible au caractère réel du métal, ce qui n'est évidemment pas le cas du mode U_3 (en métal parfait, ce dernier a une largeur d'à peine $3cm^{-1}$, avec un facteur d'exaltation dépassant les 23000). Par extension, dans l'étude d'un système à N cavités fortement couplées, certaines résonances trop fines "structurellement", seront automatiquement "tuées" par l'absorption, ce qui explique qu'on ne trouvera pas de résonances plus intenses dans un système à 5 fentes, par exemple, que dans un système à 2 fentes.

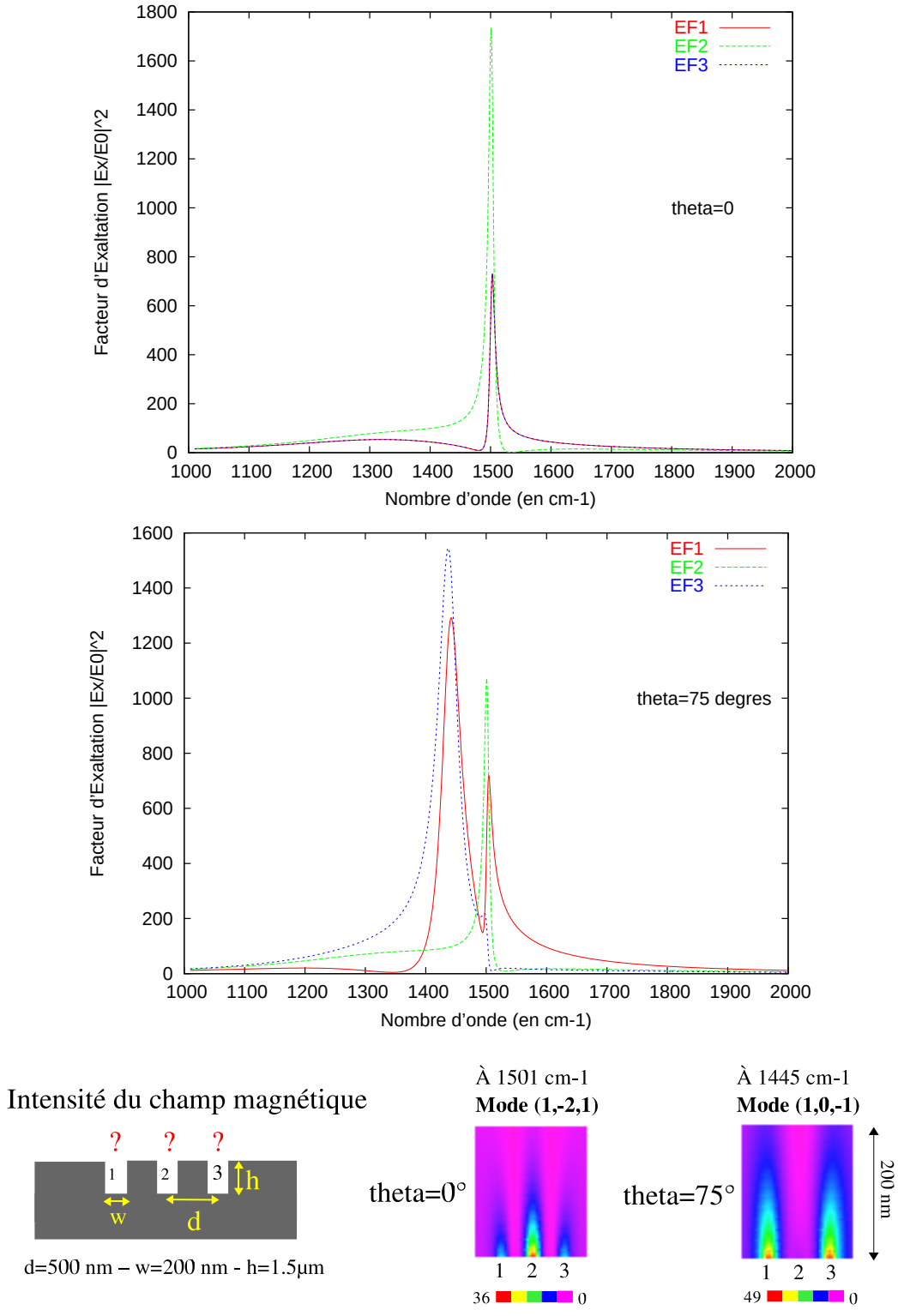


FIG. 5.3 – *En haut :* Spectres des Facteurs d'exaltation du champ électrique (normalisé) dans un triplet de cavités équidistantes en Or (EF_i pour la cavité i). En incidence normale, les modes $U_1 = [1, 1, 1]$ (très large, vers $1350cm^{-1}$) et $U_3 = [1, -2, 1]$ (très fin, à $1501cm^{-1}$) sont les seuls excités. En incidence oblique, le mode $U_2 = [1, 0-1]$ (fin, à $1445cm^{-1}$) est excité et prend le dessus sur le mode U_3 quand θ augmente. *En bas :* cartographies de l'intensité du champ magnétique juste au-dessus des 3 cavités, aux résonances fines, reflétant les différentes formes de localisation.

5.2.3 Evolution des modes propres en fonction de la distance

Le diagramme de la Figure 5.4 montre l'évolution des fréquences de chaque mode propre du système trifente ainsi que leur amortissement respectif, en fonction de la distance de séparation d (toujours dans le cadre de l'équidistance deux à deux).

Autant dire que, comme pour tout système à trois corps, le comportement collectif devient très difficile à intuiter. On voit cependant que *le couplage fort en champ proche ($d < \lambda/4$) lève complètement la dégénérescence* : l'écart fréquentiel entre les fréquences propres ω_i est maximal. Qui plus est, on observe la hiérarchie suivante : $\boxed{\omega_1 < \omega_2 < \omega_3}$ et $\boxed{\gamma_3 < \gamma_2 < \gamma_1}$ [5]. Comme dans le cas d'une paire de cavités, ce type de couplage peut entraîner l'effondrement des largeurs spectrales, mais de *certains* modes (ici U_2 et U_3), ce qui traduit dans ce cas un couplage "sub-radiant" des résonateurs métalliques.

A plus grande distance, notamment vers $d \approx 4.9\mu m$, c'est le mode symétrique U_1 qui est le plus favorisé. D'ailleurs, l'expression numérique du vecteur U_1 *ne se conserve pas* quand on modifie l'écartement des fentes. Le tableau numérique 5.1 vient donc en complément du diagramme. Il montre notamment l'expression exacte des trois vecteurs propres complexes U_j et leur évolution lorsque les cavités sont de plus en plus écartées. Seul le mode U_2 est immuable. On comprend bien que si les cavités n'étaient pas équidistantes, le problème électromagnétique serait encore plus compliqué.

	$d = 0.5\mu m$	$d = 3.2\mu m$	$d = 4.9\mu m$	$d = 6.9\mu m$
U_1	[1, 1.11-i0.14, 1]	[1, 1.81-i0.07, 1]	[1, 1.51+i0.34, 1]	[1, 1.08+i0.1, 1]
$\omega_1(cm^{-1})$	1344	1478	1430	1368
$\lvert e_1 \rvert$	**0.47**	**0.137**	**0.098**	**0.215**
U_2	[1,0,-1]	[1,0,-1]	[1,0,-1]	[1,0,-1]
$\omega_2(cm^{-1})$	1440	1472	1406	1458
$\lvert e_2 \rvert$	**0.042**	**0.166**	**0.182**	**0.157**
U_3	[1, -1.75-i0.24, 1]	[1, -1.11-i0.10, 1]	[1, -1.31+i0.317, 1]	[1, -1.82-i0.014, 1]
$\omega_3(cm^{-1})$	1502	1358	1488	1462
$\lvert e_3 \rvert$	**0.011**	**0.209**	**0.254**	**0.142**

TAB. 5.1 – Tableau donnant, en fonction de la distance d, l'évolution des vecteurs propres (complexes) du système trifente, associés à leur fréquences propres $\omega_{i=1,2,3}$ (en nombre d'onde) et à leurs amortissements (donnés ici par le module minimal des valeurs propres $e_{i=1,2,3}$). Le métal est l'or, les dimensions des cavités sont $h = 1.5\mu$m et $w = 200nm$. *Remarque :* pour une fente unique, le minimum de $|e| = \mathbf{0.18}$ à $1440cm^{-1}$.

[5] C'est typiquement le genre de comportement qui permet de faire un rapprochement (sans que cela fasse office d'analogie) entre, d'une part, une cavité sub-longueur d'onde (avec ses modes propres discrets), et d'autre part un "atome à potentiel carré" (avec des niveaux d'énergies quantifiés) couplé à un continnum. L'ensemble à n cavités fait alors penser à un édifice moléculaire dont les liaisons (liantes ou antiliantes) sont plus ou moins stabilisantes. Chaque cavité est auréolée d'un lobe de diffusion caractérisant la probabilité de présence des photons à son voisinage. L'interférence (le recouvrement) des champs diffusés par les cavités en interaction font donc penser à des combinaisons linéaires d'orbitales. La dissymétrie de la structure du point de vue du champ incident serait même assimilable à une propriété de chiralité.

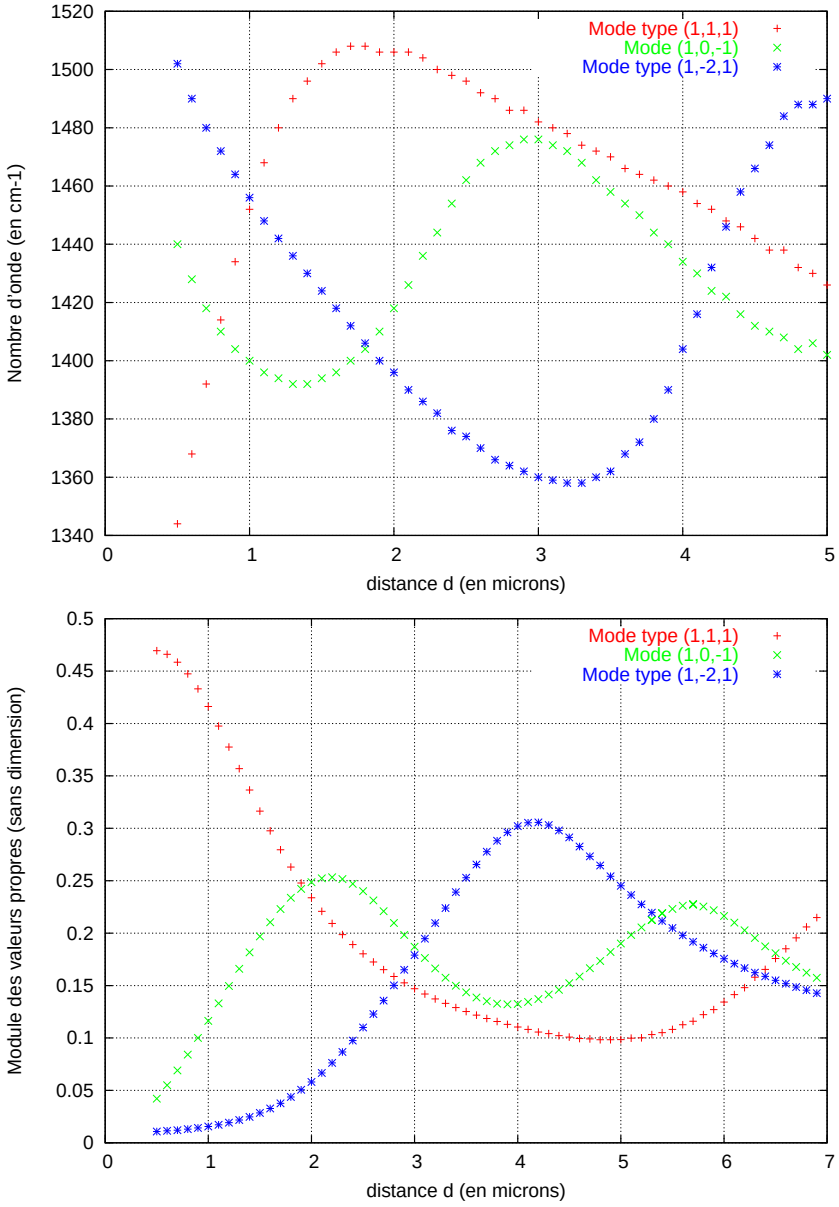


FIG. 5.4 – Diagrammes donnant, *en haut*, les fréquences de résonance des trois modes propres, et, *en bas*, les modules minimaux des trois valeurs propres $|e_i|$ associées ($\propto$ amortissement ou largeur spectrale de chaque mode), dans un triplet de cavités identiques et équidistantes, en fonction de la distance de séparation d, et sur la plage de fréquence $[1300, 1550]cm^{-1}$ (lieu des résonances Fabry-Perot). Les paramètres sont $h = 1.5\mu$m et $w = 200$nm. Le métal est l'or. Ces diagrammes sont indépendants de θ. On observe, dans le cas du couplage en fort champ proche (d petit), une hiérarchisation des modes propres : le plus fin spectralement est aussi celui qui a la fréquence de résonance la plus élevée.

5.3 Généralisation à N cavités couplées

L'application au triplet de cavités permet maintenant d'imaginer la progression qui s'effectue en multipliant le nombre d'oscillateurs couplés (nous nous sommes contentés de considérer des cavités *identiques*). Leur multiplicité entraîne une multiplicité de résonances, chacune associée à une configuration plus ou moins complexe de la localisation de la lumière. Ces modes collectifs sont issus des jeux de rétro-diffusion multiples entre les champs générés (diffusés) par toutes les rainures en présence.

Aux résonances Fabry-Perot, les moments dipolaires effectifs de chaque cavité se combinent suivant des arrangements qu'il est pratique de visualiser par des flèches symboliques $\leftarrow$ et $\rightarrow$. C'est ce que nous avons fait pour l'étude des systèmes à deux puis trois fentes. Selon le couplage "sub-radiant" ou "super-radiant" des moments effectifs, les modes propres auront des largeurs spectrales pouvant être très larges ou très fines. Comme les résonances fines sont particulièrement sensibles à la fréquence d'excitation, on comprend la sensibilité spectrale d'un système à corrugation complexe. A cela s'ajoute la compétition importante entre les différents modes excités dans un ensemble de résonateurs nombreux, si bien qu'on arrive vite, à des spectres de résonance présentant des profils presque chaotiques. A certains angles ou à certaines fréquences, des phénomènes de *hot spot* peuvent apparaître, ce qui rappellerait assez bien (sans être équivalent à ce problème) les phénomènes physiques observés par Grésillon *et al* [1].

On a pu voir aussi que le fort couplage en champ proche implique systématiquement l'effondrement des largeurs spectrales de certains modes propres. Les plus petites finesses de résonance s'obtiennent dans les systèmes à cavités nombreuses. Cependant, deux points s'opposent à cet effondrement :

1. L'amplitude des résonances est, en dernier ressort, bornée par l'absorption du matériau. La physique exposée ici rentre dans le cadre d'une approximation qui a ses limites : les parois verticales des cavités sont considérées parfaitement conductrices, et les *conclusions sur de possibles modes hyper-fins sont à prendre avec des pincettes.*
2. D'autre part, comme pour le cas du système à 2 fentes (page 73), on s'attend à ce que chaque mode propre soit excité par un champ excitateur "effectif", dont le poids est d'autant plus faible que le mode correspond à une localisation de la lumière spatialement compliquée. La finesse d'une résonance donnée serait donc contrecarrée par la faiblesse de son champ incident effectif.

Tout cela expliquerait qu'en métal réel, les facteurs d'exaltation obtenus pour le couple de fentes sub-longueur d'onde soient indépassables.

Il n'y a que dans le cas où les N cavités sont *équidistantes et fortement couplées en champ proche* qu'on lève très bien la dégénérescence des modes propres : *ils se dispatchent en un éventail très bien hiérarchisé, le mode le plus fin étant celui qui a*

la fréquence propre la plus haute. C'est le cas pour les systèmes à 2 et 3 cavités. Ce devrait être vrai en général, bien que la chose ne soit pas démontrée.

Toujours dans le cas des structures équidistantes, la symétrie du problème implique d'avoir : i) soit des modes propres symétriques (ou pseudo-symétriques), excités en incidence *normale*, soit ii) des modes propres anti-symétriques, excités exclusivement en incidence *oblique*[6].

La bonne lévée de dégénérescence, et le caractère symétrique ou antisymétrique des modes collectifs, sont deux ingrédients favorables au contrôle de la localisation de la lumière dans une collection de N cavités couplées en champ proche. Ce contrôle est cependant limité. La section suivante tente de démontrer de quoi il retourne.

5.4 Contrôle (limité) de la localisation de la lumière dans un quintuplet de cavités

Nous avons démontré dans le Chapitre précédent que le contrôle de la localisation de la lumière, à l'échelle sub-longueur d'onde, était théoriquement possible pour un système de 2 cavités couplées en champ proche. Le fait que les modes propres d'un tel système soient indépendants de la distance de séparation aide grandement la mise en pratique de ce contrôle, puisqu'on peut jouer *précisément* sur l'excitation de l'un ou l'autre pour localiser la lumière dans telle ou telle fente.

En fait, si on augmente le nombre de cavités couplées, l'évolution est la suivante :

- Dans le système bifente, les 2 vecteurs propres sont *fixes* ($[1,1]$ et $[1,-1]$) quelle que soit la distance de séparation.
- Dans le système trifente, il n'y a plus qu'*un* seul vecteur propre fixe (à savoir $U_2 = [1,0,-1]$), *SI* on est dans le cas de l'équidistance.
- Pour 4 fentes et plus, il n'y a plus de vecteur propre fixe. Ils évoluent tous selon le choix des distances.

Néanmoins, il est possible (mais pas toujours) de localiser la lumière dans un *ensemble bien défini* de cavités, en excitant préférentiellement tel ou tel mode propre collectif du système sub-longueur d'onde. Pour cela, il faut avoir ciblé les différentes fréquences de résonances, dans les incidences normale et oblique. A ces fréquences déterminées, soit l'incidence normale suffit à exciter au maximum le mode collectif qui nous intéresse (il ne peut alors s'agir que d'un mode propre symétrique), soit on a recours, comme dans le Chapitre 4, à deux ondes incidentes judicieusement déphasées entre elles, dans le cas où le mode collectif exige une incidence oblique (mode antisymétrique). La Figure 5.5 illustre bien ce contrôle des exaltations locales dans un quintuplet de cavités sub-longueur d'onde, équidistantes 2 à 2.

Tout cela se passe dans une plage de fréquence très réduite, sur des distances petites devant la longueur d'onde ($\lambda > 6\mu$ m). Le point nouveau, quand même, c'est qu'au-delà

[6]Rien ne dit qu'en cassant l'équidistance, les modes restent ou symétriques ou anti-symétriques (intervention de nouveaux déphasages mutuels entre les champs de cavité).

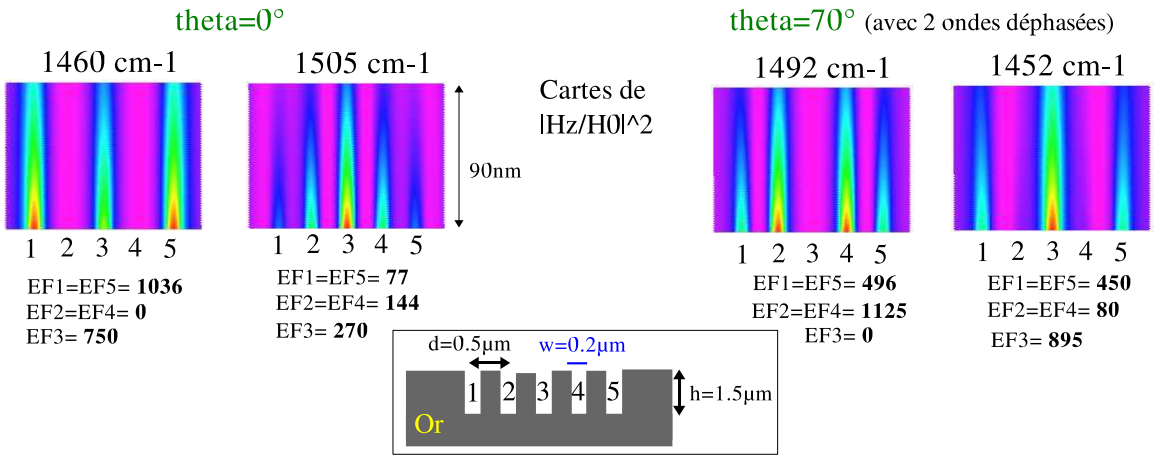


FIG. 5.5 – **Système à 5 cavités équidistantes.** Cartes d'intensité du champ magnétique, juste au-dessus des fentes, pour différentes configurations d'incidence. Les cavités sont numérotées de 1 à 5 et paramétrées comme l'indique le schéma du système. Les EF_i sont les facteurs d'exaltation précis associés à chaque cavité. Les fréquences de travail (en cm^{-1}) sont les fréquences où se distinguent les 4 modes propres du système les plus résonants (le 5ème mode, extrêmement large, pour lequel les cavités résonnent toutes en phase, n'est pas illustré). Différentes combinaisons de cavités sont allumées selon le choix de fréquence et les conditions d'incidence. On peut donc contrôler la distribution d'énergie (reflétées par les EF_i) dans certains ensembles de cavités. $N.B.$: dans le cas où on recourt à 2 ondes incidentes, les intensités ont été divisées par 4, pour une plus juste comparaison au cas $\theta = 0$.

de la simple localisation dans un certain jeu de cavités, c'est aussi la *quantité d'énergie* injectée dans tel ou tel résonateur, que l'on contrôle, puisque les vecteurs propres ne sont pas à coefficients unitaires : on peut prédire, par exemple, qu'à une résonance donnée, bien contrôlée, telle cavité *concentrera* x fois plus d'énergie que sa voisine. La possibilité d'effectuer un ***adressage quantitatif*** de la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde semble trouver là un exemple intéressant.

5.5 Considérations de symétrie

Il est toujours utile d'analyser les propriétés de symétrie d'un arrangement donné de cavités (on suppose que toutes les cavités sont identiques). Il arrive que certaines d'entre elles voient le même environnement *matériel*, les autres étant dites singulières.

Par exemple, les cavités numérotées 1 et 3 du triplet équidistant sont *potentiellement équivalentes*, mais, *en général*, ne seront pas dans le même *état*. C'est encore plus flagrant pour un grand nombre de cavités. La "brisure" de la symétrie provient de ce que l'angle d'incidence du champ excitateur est (*a priori*) non-nul : la réponse de la cavité 1, à θ donné, sera en fait celle de la cavité 3 à $-\theta$.

La cavité numéro 2 du triplet équidistant, quant à elle, est sur un centre de symétrie de la structure, et le changement de signe de l'angle ne doit rien changer.

Notons $\mathcal{C}_+$ la classe des fentes dont la réponse spectrale est invariante par la transformation angulaire $\theta \to -\theta$, et $\mathcal{C}_-$ la classe des fentes dont ce n'est pas le cas. Cette

dernière classe contient en fait des couples de cavités où la réponse optique de l'une est exactement celle de l'autre par la transformation $\theta \to -\theta$. Il n'y a pas d'autre classe.

- triplet équidistant de cavités : le couple $(1,3) \in \mathcal{C}_-$ et $2 \in \mathcal{C}_+$
- quadruplet équidistant de cavités : 2 couples $(1,4)$ et $(2,3) \in \mathcal{C}_-$
- quintuplet équidistant de cavités : $(1,5)$ et $(2,4) \in \mathcal{C}_-$, et $3 \in \mathcal{C}_+$
- etc...

L'équidistance est un cas d'école. Prenons l'exemple plus compliqué d'un triplet de fentes non-équidistantes. Un tel système *ne* contient *pas* de symétrie, ce qui rend la prédiction (même intuitive) des modes propres difficile. En revanche, la "périodisation" de ce motif peut donner une symétrie à la structure d'ensemble, comme le montre le dessin suivant :

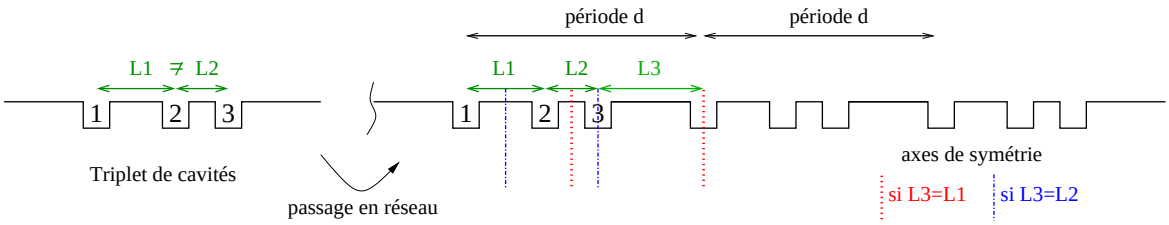


FIG. 5.6 – Schéma, à gauhe, d'un triplet de cavités non-équidistantes 2 à 2 ($L_1 \neq L_2$), et, à droite, son itération périodique (période complétée par L_3), faisant apparaître des axes éventuels de symétrie dans le nouveau réseau.

Nous venons de construire un réseau composé, à 3 cavités par période ($L_1 \neq L_2$). Quand les trois distances L_i du dessin sont différentes, les cavités ne sont équivalentes qu'à leurs "homologues" dans les autres périodes. Si elles ne sont pas toutes différentes, il apparaît des axes de symétrie :
- Si $L_3 = L_1$, alors $(2,3) \in \mathcal{C}_-$ et $1 \in \mathcal{C}_+$.
- Si $L_3 = L_2$, alors $(1,3) \in \mathcal{C}_-$ et $2 \in \mathcal{C}_+$.

Il suffit alors de n'étudier que les champs de certaines cavités. Ce raisonnement simple est bien sûr extensible à un arrangement plus complexe.[7].

Dans le réseau à 3 fentes de la Figure 5.6, les champs électromagnétiques de deux cavités "homologues" (inter-période) sont déphasés d'une certaine puissance de $e^{ikd\sin\theta}$ (coefficient de pseudo-périodicité). Par contre, *au sein même du motif*, les champs de deux cavités peuvent avoir entre eux des rapports *a priori* quelconques[8]. Autrement dit, la non-symétrie de la structure autorise des interactions que ne permet pas un

[7]Dans le cas où le nombre N de cavités est grand, on n'envisagerait pas d'analyser N spectres de réponse. Tout au plus est-il plus pratique d'analyser le spectre de la moyenne des exaltations internes aux cavités, le spectre de l'écart-type des exaltations, ainsi que celui des maxima et minima absolus, obtenus sur tout l'ensemble du système.

[8]Attention : *ce n'est pas une de différence de phase spécifique qui implique la résonance*, l'implication va dans l'autre sens. Deux cavités peuvent être en opposition de phase sans qu'il y ait d'exaltation particulière de leur champ interne ; il suffit de considérer le réseau simple avec $e^{ikd\sin\theta} = -1$

réseau simple (à 1 cavité par période). C'est le pont que nous faisons ici pour aborder maintenant le cas des réseaux composés (à plusieurs cavités par période).

5.6 Etude de réseaux "quasi-périodiques"

Le réseau périodique simple peut être perçu comme un cristal d'oscillateurs "parfaitement ordonné" (la phase est bloquée à l'échelle de tout le système). Le mode de résonance Fabry-Perot de toutes les cavités sub-λ est *infiniment dégénéré* dans un tel réseau. En cassant cet ordre parfait, c'est-à-dire, en sortant de la simple périodicité, *il apparaît des degrés de liberté supplémentaires dans le couplage des oscillateurs de cavités* : l'excitation (compétitive) des différents modes propres implique alors de nouvelles possiblités de localisation de la lumière *au sein même* de la période.

Par opposition au réseau simple, les réseaux composés, à plusieurs cavités par période, pourront être qualifiés de "quasi-périodiques" puisqu'ils contiennent un "désordre restreint" [9]. Nous allons voir comment obtenir, en brisant la symétrie du réseau, des effets de localisations très fortes, quelles sont les exaltations de champ qui les accompagnent[10], et comment cela se répercute en champ lointain (puisqu'on a l'avantage, ici, d'avoir un champ réflechi directionnel).

5.6.1 Deux façons de rompre la périodicité

Partant d'un réseau d-périodique simple, il y a deux moyens basiques de modéliser un défaut de structure, *i.e.* de provoquer la levée de dégénerescence des modes de cavité :

a) Soit tous les oscillateurs (cavités) sont identiques, et alors on module l'ordre avec au moins *2 distances L_1 et L_2 un peu différentes* : c'est ce qu'illustre la Figure 5.7.

b) Soit on ne change rien aux distances de séparation, et alors on module l'arrangement avec *2 oscillateurs de fréquences propres un peu différentes* (2 profondeurs $\neq$ notamment) : c'est ce qu'illustre la Figure 5.8.

A) Par des jeux de distances différentes

Le premier type de désordre peut être introduit (c'est le procédé a) soit en effectuant ce que j'appelle un "décroché périodique", comme dans les effets de moirés bien connus (voir schéma en Figure 5.7), soit en ajoutant une seconde cavité au sein de la période initiale (à condition de ne pas placer cette cavité en milieu de période). Les résonateurs ne sont alors *plus équivalents* au sein de la nouvelle période obtenue

[9] Le terme quasi-périodique n'est pas approprié en toute rigueur puisque le réseau reste périodique dans son ensemble (corrélation spatiale entre toutes les cavités homologues), d'où l'emploi des guillemets. Néanmoins, la complexification croissante du motif périodique peut être compris comme un désordre à courte portée (la distance fente-fente présentant une dispersion non-nulle autour de la distance moyenne). Dans le cas où la période est structurée avec un jeu de deux distances différentes (grâce, par exemple, à un séquençage de Fibonacci), on peut qualifier le réseau de *commensurable*.

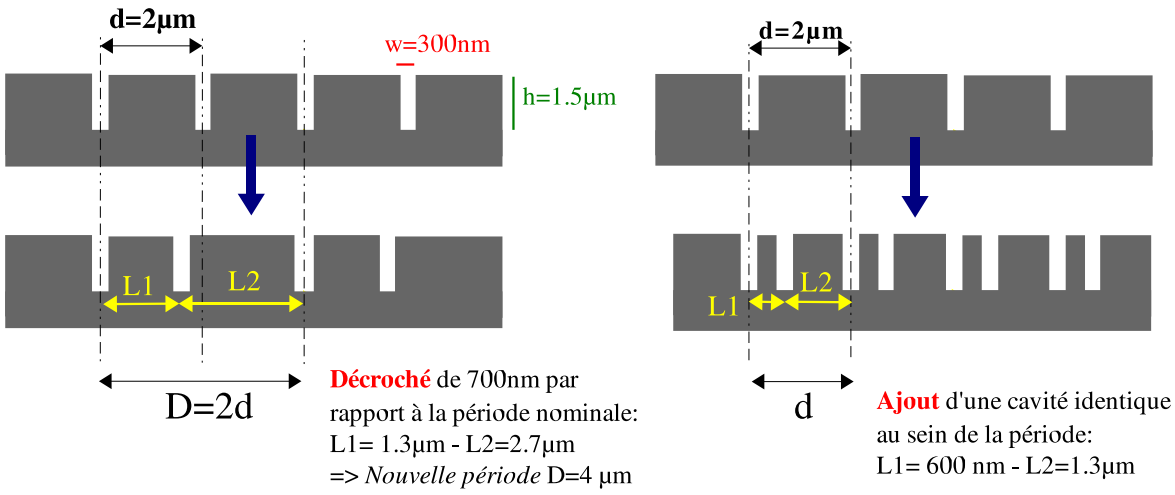
[10] localiser ne signifie pas nécessairement exalter.

(vis-à-vis du champ indident). Les cavités, toutes dans la classe $\mathcal{C}_+$ initialement (réseau simple), vont passer dans la classe $\mathcal{C}_-$ par ce procédé.

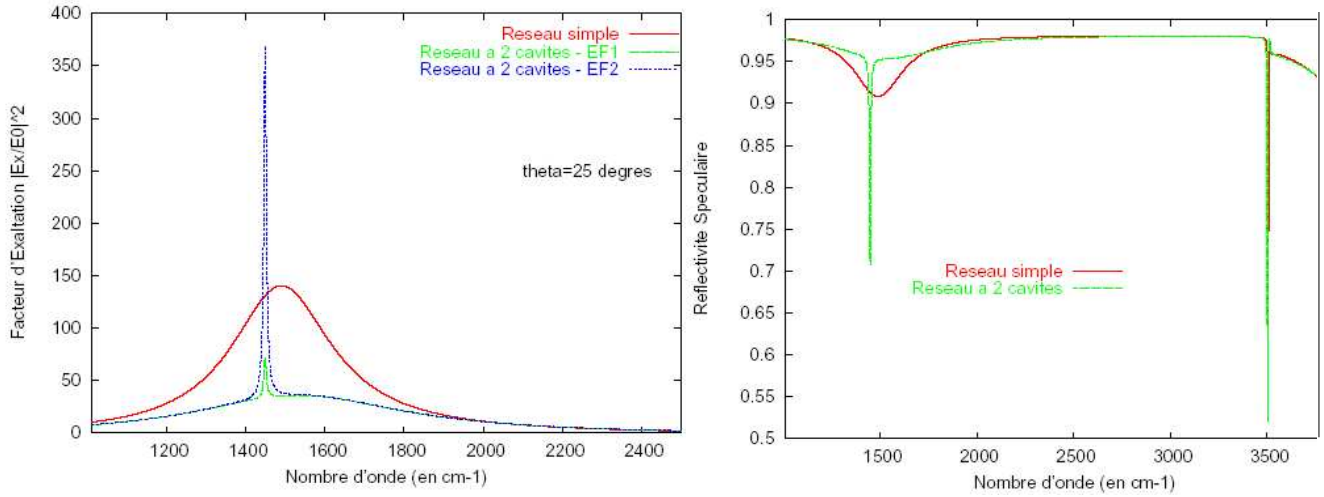
La Figure 5.7 montre les spectres des Facteurs d'exaltation du champ électrique dans les cavités d'un réseau simple, et d'un réseau à 2 cavités par période ($EF1$ pour la première cavité, $EF2$ pour la seconde), selon le cas du "décroché périodique" ou le cas d'une "cavité ajoutée". Ils font apparaître, dans les réseaux composés, des pics de champ que *ne présente pas le réseau simple*. Les résonances fines, de type Fabry-Perot, n'apparaissent qu'en incidence *oblique*, et sont dues au couplage de type antisymétrique entre les résonateurs, couplage autorisé au sein d'une période à 2 cavités. Ces résonances correspondent à des plongeons très étroits de la réflectivité spéculaire, ce qui indique bien le caractère peu radiatif des résonances antisymétriques. Sortir de l'ordre parfait du réseau simple provoque donc des effets de localisation de la lumière à certaines fréquences.

En terme d'exaltation, le cas du "décroché périodique" est le plus intéressant car brusquement, la période passe de d à $2d$. Le rapport $w/periode$ chute alors d'un facteur 2, ce qui mène à de très fortes concentrations du champ, mais seulement en incidence oblique (on a créé un mode antisymétrique). Une autre observation est l'apparition subite du premier *plasmon de surface* horizontal dans la même zone de fréquence, renvoyé de 3500 à $1750cm^{-1}$, d'après le spectre de réflectivité spéculaire. En ce sens, on provoque une localisation supplémentaire du champ, en surface cette fois, dans notre domaine spectral.

Toujours en référence à la Figure 5.7, si on ajoute, au contraire, une cavité au sein de la période initiale, les 2 résonateurs doivent se partager l'énergie incidente, d'où de moins bons facteurs d'exaltation, bien que la localisation reste efficace . La configuration où les deux cavités d'une même période sont très proches l'une de l'autre, mène aux plus grandes exaltations : c'est l'équivalent du système de deux fentes couplées en champ proche, mais rendu périodique.



Cas d'une cavité *ajoutée* au sein de la période



Cas d'un *décroché* dans la périodicité

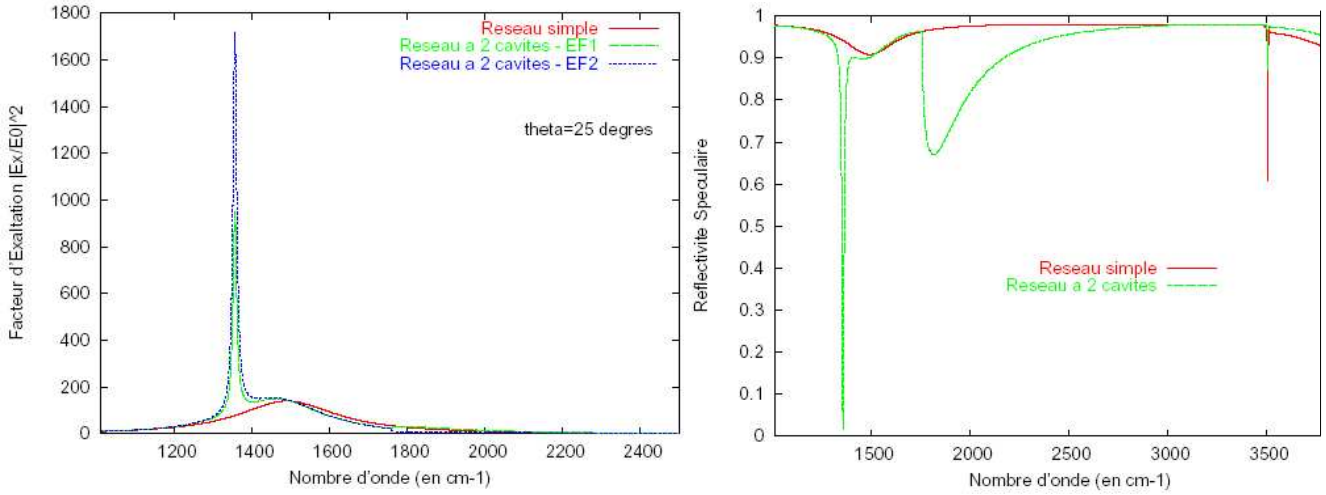


FIG. 5.7 – voir A) page 108.

B) Par des jeux de profondeurs différentes

La brisure de symétrie par le procédé b) consiste à changer légèrement la profondeur d'une cavité toutes les deux périodes (voir le schéma sur la Figure 5.8). On obtient de la sorte un réseau composé, à deux oscillateurs par période, de fréquences propres respectives un peu différentes. La Figure 5.8 montre le spectre des facteurs d'exaltation dans les deux cavités d'un tel réseau (simulations effectuées dans le cadre de la méthode modale restreinte, avec l'impédance de surface). Au lieu d'avoir la réponse typiquement lorentzienne d'une résonance de cavité, on observe un pic d'exaltation supplémentaire, très intense ici, y compris en incidence *normale* (ce qui n'est jamais le cas dans le procédé a) exposé plus haut). On est donc conduit, pareillement, à des effets importants de localisation de la lumière.

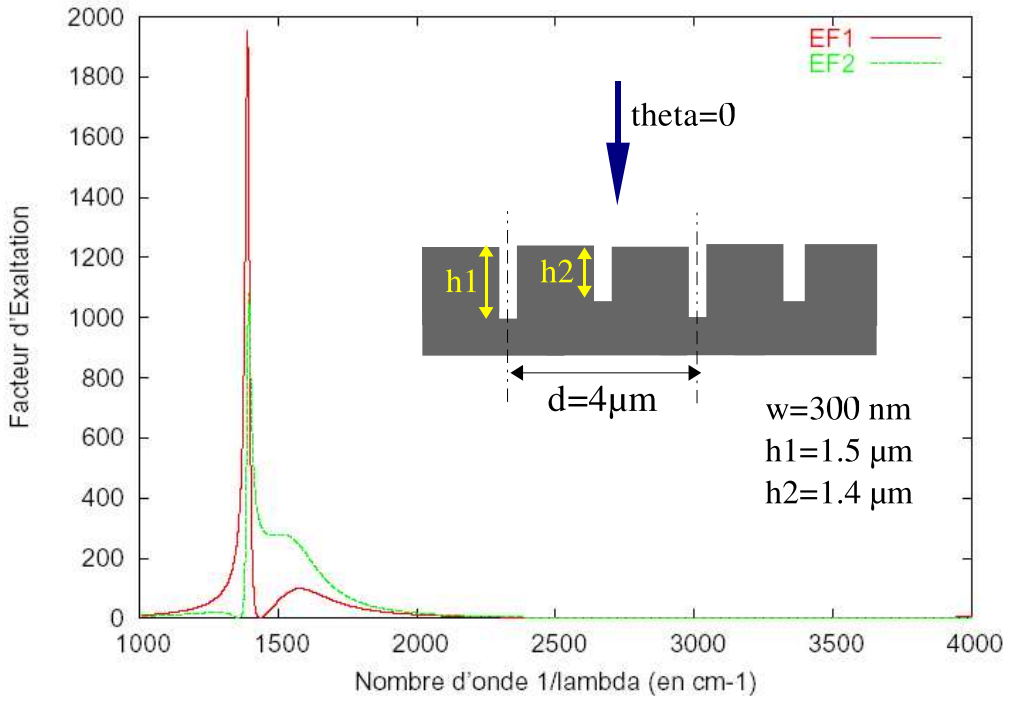


FIG. 5.8 – Spectres des facteurs d'exaltation du champ électrique dans un réseau d-périodique à 2 résonateurs par période, en incidence normale ($EF1$ pour la première cavité, $EF2$ pour la seconde). Toutes les fentes sont équidistantes deux à deux. On observe une résonance très fine des mode guidés, qui n'apparaît pas quand $h_1 = h_2$. Ici les profondeurs sont légèrement différentes, si bien qu'un couplage quasi-antisymétrique, peu radiatif, est possible en incidence *normale*.

En combinant des choix de distances et de profondeurs différentes (mélange des procédés a) et b)), on peut engendrer des systèmes présentant une forte sensibilité aux paramètres extérieurs d'excitation. On peut notamment construire un réseau métallique sub-longueur d'onde à deux cavités différentes par période, présentant des facteurs d'exaltation pouvant atteindre facilement 4000 à 5000 en incidence normale (à la fréquence d'occurrence de la résonance fine, la réflectivité tombe alors à zero).

5.6.2 Extinction sélective dans un réseau à deux cavités par période

A la lecture du Chapitre 4 sur le système bifente, on pouvait naturellement se demander s'il était possible d'éteindre, cette fois, dans un *réseau* à deux cavités sub-longueur d'onde par période, la cavité de notre choix. Les résultats de cette section y répondent par l'affirmative. Contrairement au cas des deux fentes couplées en champ proche, l'extinction sélective peut ici se faire *sans recourir* à une deuxième onde incidente, en prenant avantage du fait que la périodicité du système joue déjà un rôle implicite (la pseudo-périodicité peut être perçue comme une contrainte supplémentaire, qui "frustre" l'excitation du mode anti-symétrique à grand angle d'incidence).

Toutefois, l'effet de commutation illustré à la fin du Chapitre 4 ne s'applique, dans le cas d'un réseau, que pour des *géométries bien choisies*. Je ne détaillerai pas la technique numérique de détection des "bons" paramètres de réseau, mais dirai juste qu'on a intérêt, contrairement à ce qu'on pourrait penser, à prendre des distances L_1 et L_2 relativement voisines, donc *assez proches de la demi-période*. Avec un jeu de distances (L_1, L_2) approprié, et une assez grande période (pour maximiser les exaltations des résonances Fabry-Perot), on peut trouver un angle d'incidence θ_e précis pour lequel une des deux cavités de chaque période s'éteint *complètement* au passage d'un certaine fréquence. Pour l'angle d'extinction $-\theta_e$, on a exactement la configuration inverse (les rôles des cavités sont permutés).

Par conséquent, à θ_e (ou $-\theta_e$), la moitié des cavités du réseau ne résonne plus, tandis que l'autre motié résonne fortement. Le contrôle du confinement de la lumière s'effectue simultanément sur toutes les cavités homologues, non plus à un échelle très localisée comme pour le système bifente.

La Figure 5.9 montre l'effet de commutation optique pour un "bon" exemple de réseau en or dans l'infra-rouge. Notons la remarquable sélectivité spectrale du phénomène en question. En outre, la fabrication du réseau illustré ici est tout à fait accessible aux technologies actuelles. Ces résultats peuvent inspirer des applications pratiques et directes pour des circuits opto-électroniques (adressage de la lumière) ou en spectroscopie.

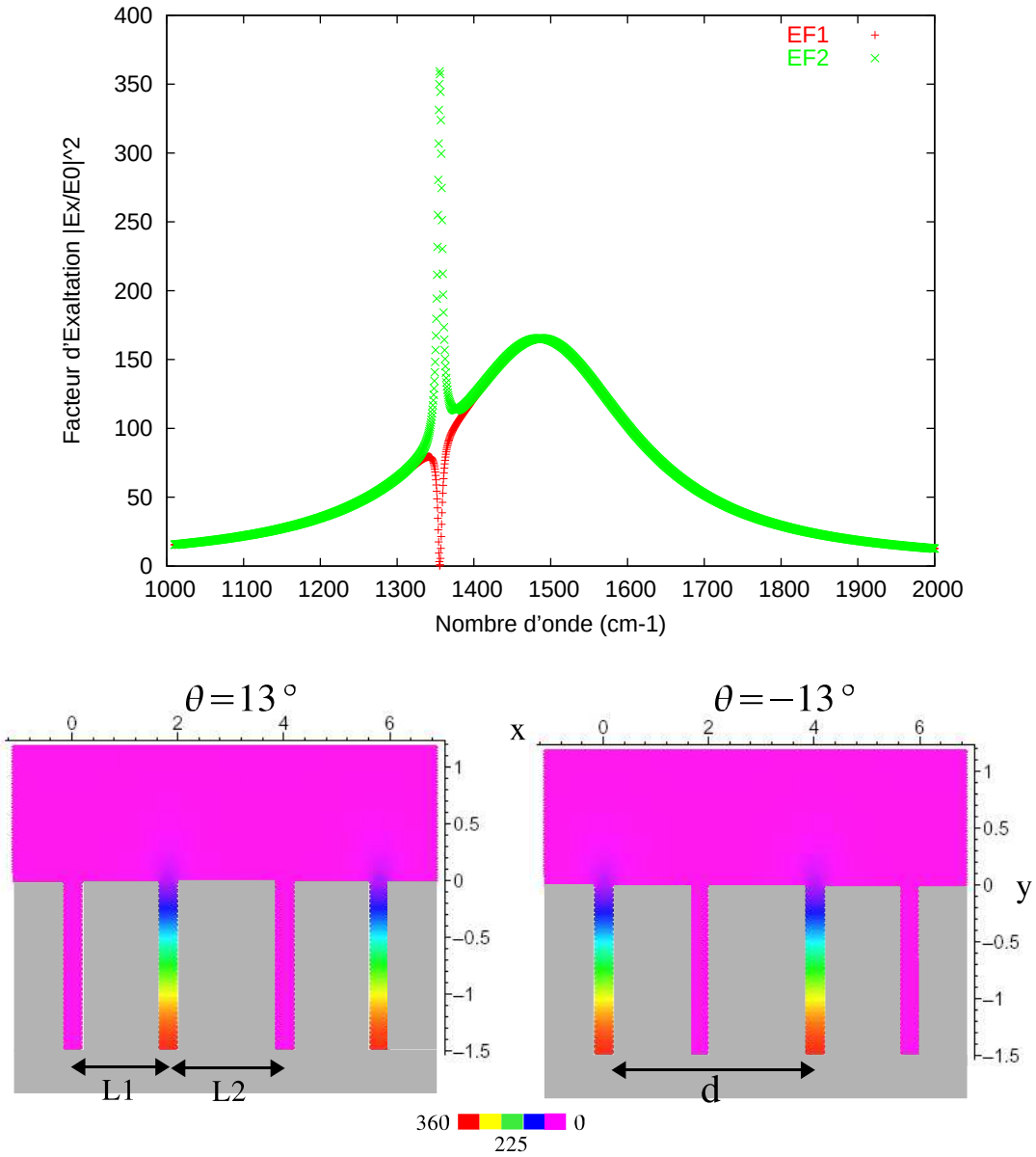


FIG. 5.9 – En haut : spectre des facteurs d'exaltation des cavités 1 et 2 d'un réseau en or à deux fentes par période, à l'angle d'extinction $\theta_e = 13^o$. Les paramèters de réseau sont $d = 4\mu m$, $h = 1.5\mu m$, $w = 0.3\mu m$, $L1 = 1.8\mu m$ et $L2 = 2.2\mu m$. La cavité 1 s'éteint au passage de la fréquence $1355.5cm^{-1}$, tandis que l'autre est fortement excitée. En bas : cartographies de l'intensité du champ magnétique à $1355.5cm^{-1}$, quand $\theta = \theta_e$ et $\theta = -\theta_e$, illustrant l'effet de commutation à l'échelle de tout le réseau. Les coordonnées x et y sont en microns. Deux périodes consécutives sont représentées dans chaque carte de champ.

5.7 Preuve expérimentale des nouvelles localisations de la lumière dans des réseaux commensurables

Pour conclure ce Chapitre sur les localisations complexes de la lumière, associées à différents modes de couplage entre n résonateurs métalliques, nous apportons, dans cette section, la preuve concrète que de nouvelles et fines résonances de type Fabry-Perot ont bien été observées dans des réseaux périodiques composés, *i.e.* à plusieurs cavités par période. Ce sera notamment l'occasion de valider un certain nombre de points abordés au cours de l'étude analytique du triplet de cavités sub-longueur d'onde.

5.7.1 Fabrication et description des échantillons

Le Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (LPN) du CNRS à Marcoussis, avec lequel nous avons collaboré ici, a pu réaliser des réseaux en or à 2 et 3 cavités par période (arrangements quasi-périodiques les plus simples), de taille sub-micrométrique (prévus pour être étudiés dans l'infra-rouge). Le grand intérêt de la structuration périodique est de rendre le champ réfléchi *directionnel*, et d'avoir un signal beaucoup plus fort que pour un système à quelques cavités. En analysant le champ lointain (ici le rayon réfléchi spéculaire), on peut remonter aux phénomènes électromagnétiques qui se déroulent à l'échelle locale, avec l'appui de la modélisation théorique.

La production des réseaux a exigé d'essayer deux protocoles de fabrication complètement différents, pour obtenir un résultat finalement appréciable en début d'année 2006 (faible rugosité de surface, couche métallique suffisamment épaisse, etc...). Les expériences se sont effectivement montrées concluantes.

Les échantillons obtenus suivant le deuxième protocole sont des réseaux lamellaires en or massif, construits sur une couche d'or (réseaux en réflexion). La méthode de fabrication se décompose chronologiquement ainsi[11] :

1. dépôt d'or sur substrat de silicium pour constituer le fond métallique du réseau.
2. dépôt d'une couche diélectrique de Si_3N_4 d'épaisseur $1\mu m$ (profondeur attendue des cavités).
3. le film diélectrique est gravé pour constuire des piliers de Si_3N_4 (qui seront les futures cavités), lesquels sont surplombés d'une casquette en TiAu.
4. métallisation de toute la surface avec de l'or.
5. dissolution des piliers dans l'acide HF.

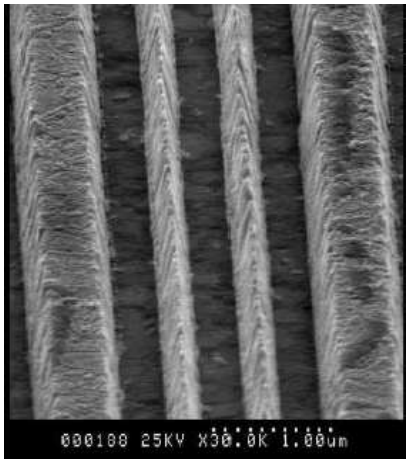
Parmi les différents échantillons fabriqués, j'ai retenu, pour l'illustration expérimentale du rapport de thèse, ceux dont la réponse optique s'est révélée à la fois la plus riche et la plus limpide :

[11] Fabrication réalisée par Stéphane COLLIN, Christophe SAUVAN et Nathalie BARDOU.

- Un réseau à 3 rainures (identiques) par période, appelé réseau **A**. Sa structure, illustrée en Figure 5.10, correspond en fait à un triplet de cavités équidistantes, itéré périodiquement.
- Un réseau à 1 seule rainure par période, appelé réseau **B**, qui est l'équivalent "simple" du réseau **A**, *i.e.* exactement de même période (et flanqué des mêmes cavités).

Le but des expériences est de montrer que le réseau complexe **A** présente d'intenses résonances électromagnétiques, *absentes* chez son équivalent périodique **B**, et attribuées à un effet de structure ("quasi-périodicité").

Dans le cas du réseau **A**, il est commode de numéroter les cavités d'un triplet donné, par 1,2 et 3 dans le sens des x positif (de gauche à droite sur la Figure 5.10). On notera L la distance qui sépare 2 à 2 les cavités d'un triplet. Le tableau 5.7.1 rassemble les paramètres géométriques des deux échantillons, avec en dernière colonne les paramètres nominaux, initialement prévus par le cahier des charges.



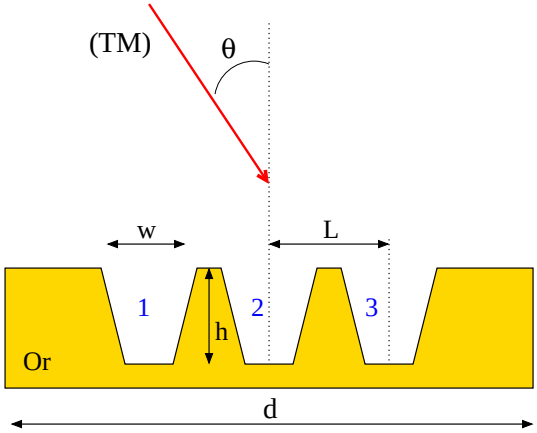


FIG. 5.10 – Image du réseau d-périodique, en Or massif, à 3 cavités par période (réseau **A**). De gauche à droite, on repère les cavités 1,2 et 3, chacune de même dimension (w, h). Chaque triplet de cavités est séparées d'une ligne métallique plus épaisse. Au sein d'une même période, les cavités sont équidistantes 2 à 2 de L entre centres de fentes. Ces dernières ont un profil évasé, et sont plus larges à l'embouchure qu'au fond (voir tableau des paramètres 5.7.1).

	*Réseau **A***	*Réseau **B***	*Paramètres Nominaux*
structure	3 rainures/période	1 rainure/période	*pour les 2 types*
période d (μm)	2.6	2.6	2.6
profondeur h (nm)	650 ± 50nm	650 ± 50nm	1.0
largeur w (nm)	de 370 à 620	de 320 à 520	300
distance L (μm)	0.65	—	0.7

TAB. 5.2 – Paramètres géométriques des échantillons périodiques **A** et **B**.

La surface totale d'un réseau est de $2 * 2 = 4mm^2$. Le fond des fentes est lisse et la rugosité très acceptable. Il faut noter que le profil des cavités n'est hélas pas rectangulaire, mais évasé. Cela provient de la méthode de dépôt métallique. L'épaisseur de métal qui sépare notamment 2 cavités voisines, dans le réseau **A**, est de l'ordre de la profondeur de peau au niveau des embouchures (une trentaine de nanomètres). Néanmoins, nous verrons que les 2 échantillons manifestent un comportement fidèle à notre modèle de réseau rectangulaire traité par la méthode modale restreinte (modèle où les cavités ne sont pas couplées à travers le métal).

D'autre part, la profondeur des rainures obtenue est de seulement 650 nanomètres. On est donc exactement dans la configuration où $4h = d$, assez défavorable : les modes de résonance Fabry-Perot seront sensiblement couplés aux plasmons de surface horizontaux (d'autant plus si l'angle θ est grand).

5.7.2 Mesures expérimentales - Comparaison à la théorie

Les mesures en champ lointain (ici, la réflectivité spéculaire du réseau) sont effectuées dans l'infrarouge ($\lambda \in [2\mu, 10\mu m]$) en utilisant un spectromètre à Transformée de Fourier FTS60A DigiLab. Le rayon incident est polarisé Transverse Magnétique (champ électrique parallèle au plan d'incidence). Les réflectivités spéculaires brutes ont été normalisées par la réflectivité d'une couche d'or (plane) de référence, déposée sur le même support que les réseaux. Les spectres de réponse sont mesurés en fonction de la fréquence des photons incidents, et peuvent être obtenus pour divers angles d'incidence afin d'obtenir la dispersion des modes excités.

Les Figures 5.11 et 5.12 présentent les spectres[12] de la réflectivité spéculaire des réseaux **A** et **B** à $\theta = 24^o$. Sur ces Figures ont été superposées les réponses optiques théoriquement attendues étant donnés les paramètres des échantillons (calculs d'après la méthode modale restreinte, moyennant un ajustement de paramètres, en particulier sur la largeur de cavité). Chaque creux de réflectivité manifeste, grâce à l'absorption qui l'accompagne, une résonance électromagnétique à l'échelle du réseau[13].

En Figure 5.11 (réseau **B**), nous voyons la résonance fondamentale "classique" de type Fabry-Perot (centrée vers $2500cm^{-1}$) ainsi qu'une résonance hybride plasmon de surface horizontal/mode guidé, très large spectralement. Ce couplage repousse d'ailleurs la résonance FP pure vers les basses fréquences.

Quand on passe au réseau **A** (3 cavités/période), la réponse optique est sensiblement différente. On voit tout de suite poindre deux pics de réflectivité, très fins et bien résolus, attribués, comme on peut s'y attendre, à des résonances Fabry-Perot plus complexes. La résonance FP "classique" est assez prononcée pour le réseau **B** puisqu'il n'y a qu'une seule cavité au sein d'une grande période. Pour le réseau **A**, en revanche, cette résonance serait beaucoup plus large mais se trouve de toute façon couplée au mode plasmon (vers $4300cm^{-1}$) car elle se situe à plus haute fréquence.

[12] Mesures effectuées par Aude BARBARA.

[13] Aux plus hautes fréquences, le bruit du signal provient d'une moins bonne efficacité du système de détection.

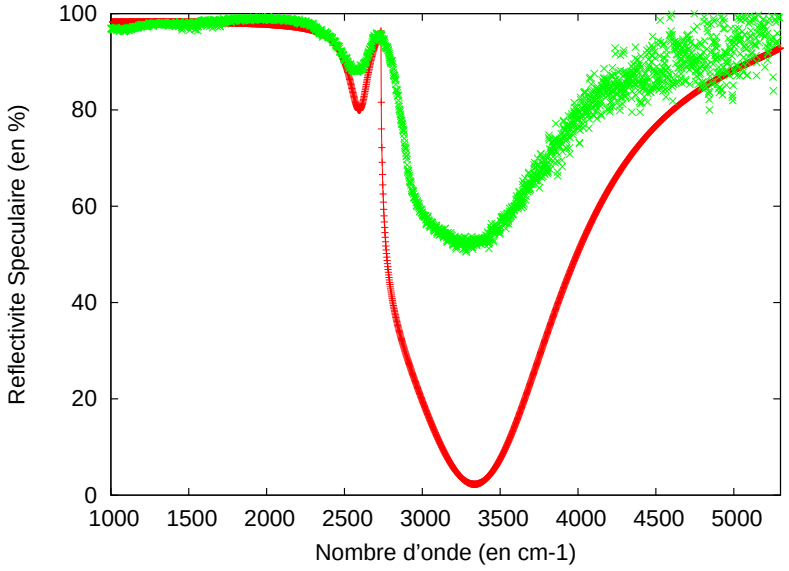


FIG. 5.11 – Réflectivité Spéculaire expérimentale ($\times$ en vert) et théorique ($+$ en rouge) du réseau **B** (1 cavité/période), à l'angle d'incidence $\theta = 24$ degrés. La simulation est faite avec la méthode modale restreinte, pour les paramètres de l'échantillon $d = 2.6\mu m$, $h = 0.65\mu$ m, et $L = 0.65\mu m$. La largeur des rainures a été ajustée à $w = 0.43$nm.

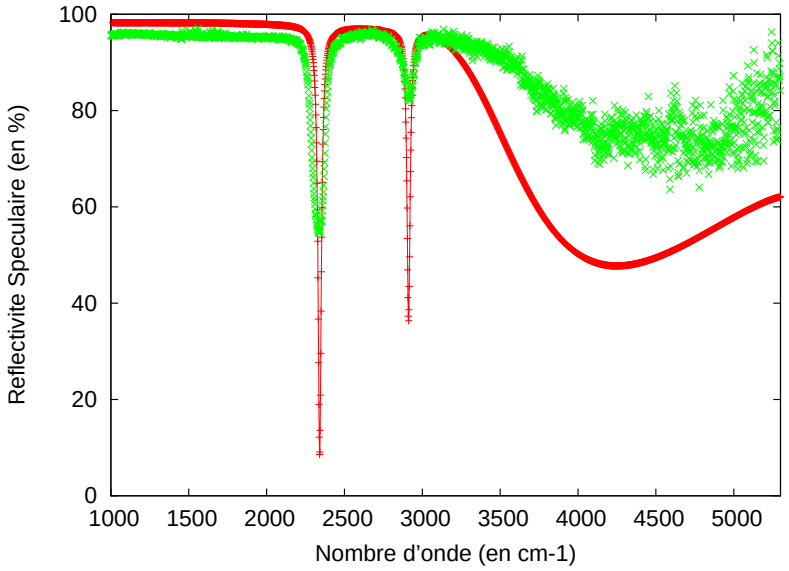


FIG. 5.12 – *Idem* Figure 5.11, mais pour le réseau **A** (3 cavités/période). Les paramètres de simulation sont également $d = 2.6\mu m$ et $h = 0.65\mu$ m, avec $L = 0.65\mu m$. La largeur w a été ajustée identiquement à la figure précédente ($w = 0.43$nm).

Nous avons donc la preuve expérimentale que de nouvelles localisations de la lumière apparaissent effectivement dans des structures métalliques périodiques composées. En outre, les simulations théoriques s'accordent bien avec les expériences. Cela nous permet de calculer la distribution du champ proche pour en déduire un certain nombre de choses, notamment que ces localisations sont bien associées à des exaltations du champ assez intenses au fond des rainures.

Le petit tableau de la Figure 5.13 est relatif au spectre de la Figure 5.12 ($\theta = 24^o$). Il veut indiquer, pour des fréquences spécifiques d'excitation, la répartition des intensités du champ magnétique *calculées* dans chacune des rainures du triplet périodique. Cela permet de situer clairement le type de résonance en jeu :

1. à $2342cm^{-1}$, nous avons une résonance Fabry-Perot "antisymétrique", *i.e.* un mode collectif "du type" $(1, 0, -1)$ rencontré dans un triplet unique. Ce mode est plus fort aux grands angles θ et doit s'effondrer vers l'incidence normale.
2. à $2910cm^{-1}$, nous avons une résonance Fabry-Perot "symétrique", *i.e.* un mode collectif "du type" $(1, -2, 1)$ rencontré dans un triplet unique. Ce mode n'est fort qu'aux petits angles d'incidence.
3. vers $4250cm^{-1}$, nous avons une résonance "hybride" (plasmon horizontal couplé au mode guide d'onde), dont la carte du champ proche (théorique) est indiquée en Figure 5.13.

Bien sûr, la courte périodicité du système frustre les résonances de chaque mode collectif, et l'angle d'incidence non-nul dissymétrise la distribution des intensités au sein de la période. Ces commentaires sont corroborés par les relevés expérimentaux présentés en Figure 5.14, correspondant aux réflectivités spéculaires des réseaux **A** et **B** à un angle d'incidence plus faible $\theta \approx 10^o$. En comparant les spectres des Figures 5.12 et 5.14, on voit très bien *l'effet de bascule* qui existe entre les modes Fabry-Perot "symétrique" et "antisymétrique" quand on passe de $\theta = 10^o$ à $\theta = 24^o$, exactement comme dans un triplet isolé de cavités (voir l'étude en page 101). C'est ce qui permet d'attribuer sans ambiguité le caractère "symétrique" ou "antisymétrique" aux modes collectifs Fabry-Perot.

Enfin, en dépit du fait que le profil des cavités n'est pas tout à fait rectangulaire, les simulations théoriques reflètent bien la réponse optique expérimentale, notamment les fréquences de résonance et la forme des creux dans les spectres de réflectivité. Il a bien sûr fallu ajuster le paramètre le plus flou, c'est-à-dire w, lequel reste compris entre les largeurs maximale (à l'embouchure) et minimale (au fond) d'une cavité. Cela revient à avoir, pour notre échantillon, un effet de moyenne sur la largeur. C'est donc un signe positif pour les applications futures si de tels systèmes présentent une robustesse de comportement malgré les écarts de géométrie.

Nbre d'onde (cm-1)	*Réfl. (%)*	$\|H_1\|^2$	$\|H_2\|^2$	$\|H_3\|^2$
2342.	9.1	358	180	437
2910.	37.3	220	334	90
4250.	47.7	14.3	6.8	2.7

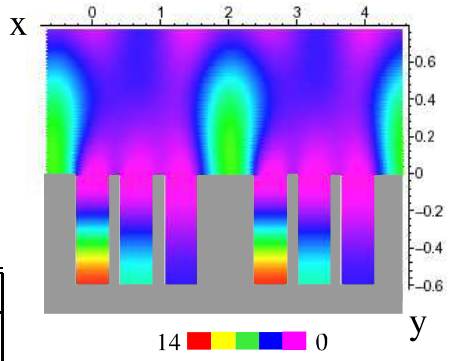


FIG. 5.13 – A gauche : tableau indiquant la réflectivité spéculaire (calculée) ainsi que les intensités du champ magnétique dans les cavités $1, 2$ et 3 du réseau **A**, sous $\theta = 24^o$, pour quelques fréquences caractéristiques (voir spectre en Figure 5.12). A droite : une cartographie de l'intensité normalisée du champ magnétique dans le réseau **A**, à la fréquence $4250cm^{-1}$ ($\theta = 24^o$). Deux périodes sont représentées, les échelles spatiales sont en microns. Nous avons la mise en place d'un plasmon de surface couplé au mode de cavité.

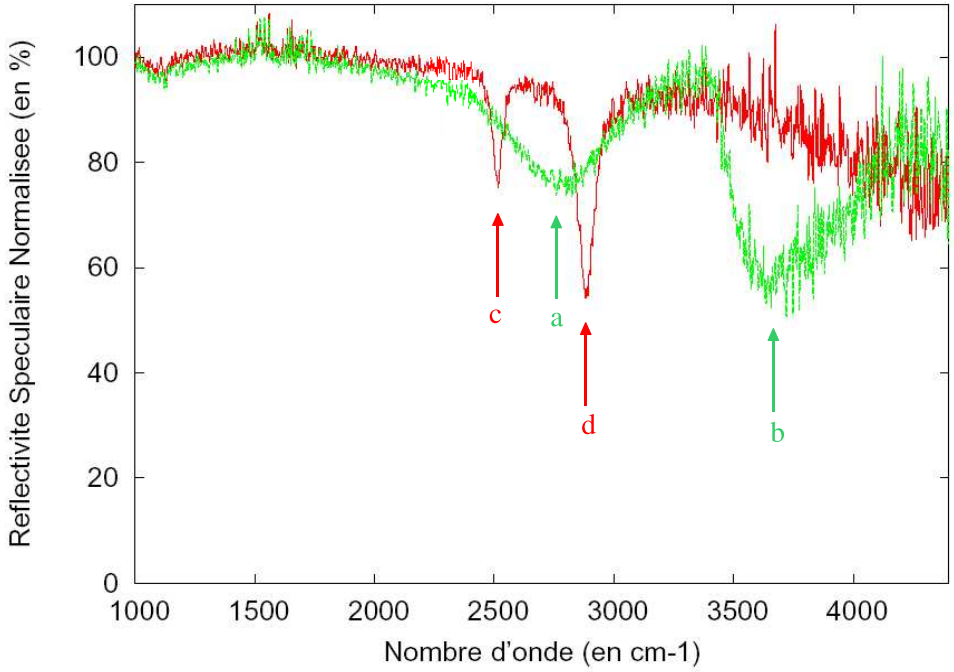


FIG. 5.14 – (couleurs) Spectres expérimentaux de la réflectivité spéculaire normalisée (u.a.) des réseaux **A** (en rouge) et **B** (en vert), à l'angle d'incidence $\theta \approx 10^o$. a) vers $2760cm^{-1}$ résonance Fabry-Perot classique (mode large). b) résonance "hybride" (plasmon horizontal couplé au mode guide d'onde). c) $2517cm^{-1}$ résonance Fabry-Perot de type "anti-symétrique". d) $2881cm^{-1}$ résonance Fabry-Perot de type "symétrique".

5.8 Conclusion

Une distribution quelconque de gravures profondes, sur une surface métallique, est un agencement plus ou moins ordonné (déterminé) d'oscillateurs électromagnétiques amortis. Chaque cavité est couplée avec *toutes* les autres (principalement avec ses voisines), et ce couplage diminue naturellement quand la distance de séparation augmente. Ainsi, l'interférence des champs diffusés par N résonateurs de cavités donnent créance à N modes propres collectifs (éventuellement dégénérés) dont l'excitation compétitive conduisent à des distributions locales de l'intensité lumineuse plus ou moins compliquée spatialement.

Connaissant la symétrie du problème et les vecteurs propres de la matrice de diffusion $\mathcal{M}$ (calculée au début du chapitre), l'excitation préférentielle de l'un ou l'autre mode collectif, depuis le champ lointain, permet d'allumer certaines combinaisons (ou classes) de cavités. Comme les vecteurs propres de ces modes ne sont pas à coefficients unitaires, les quantités de lumière confinées dans telle ou telle fente obéissent à des rapports particuliers. La phase des champs est également déterminée, d'où l'on peut dire, littéralement, que l'étude algèbrique de la matrice de diffusion $\mathcal{M}$ permet de "faire de l'algèbre" avec la lumière. Cette perspective, plutôt inattendue, conduit peut-être à la possibilité d'effectuer des opérations élémentaires avec des photons, du moins au multiplexage de la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde.

Dans le cas du réseau périodique simple, l'invariance par translation uniformise le comportement des fentes à l'échelle de tout le système. C'est en "désordonnant" la périodicité que des effets de localisation spontanée apparaissent, puisqu'ont lieu des résonances électromagnétiques auparavant interdites : de nouveaux déphasages complexes sont en effet autorisés entre les moments dipolaires effectifs générés aux embouchures de fente (à la résonance Fabry-Perot). Des cavités pourtant très proches comparativement à la longueur d'onde, ne sont plus équivalentes au regard du champ excitateur, ce qui implique des distribtutions de la lumière plus ou moins disparates et intenses sur une échelle spatiale extrêmement réduite. Nous avons apporté la preuve expérimentale de ce phénomène dans un réseau composé de trois cavités par période.

La démarche future pourra être de passer à des réseaux plus complexes, quasi-périodiques ou à caractère fractal (voir l'article de revue [3]). Leur étude est un moyen de tendre vers la modélisation d'une surface à rugosité aléatoire, laquelle nécessite un traitement mathématique difficile puisque statistique. Si les effets ont les symétries de la cause, on peut s'attendre à ce que les lois d'échelle engendrent des phénomènes électromagnétiques nouveaux.

Bibliographie

[1] S. Grésillon *et. al*, Phys.Rev.Lett. **82**, 4520 (1999). "Experimental Observation of Localized Optical Excitations in Random Metal-Dielectric Films"

[2] D.C. Skigin and R.A. Depine, Phys.Rev.Lett. 95, 217402 (2005). "Transmission resonances of metallic compound gratings with sub-wavelength slits".

[3] E.L. Albuquerque et M.G. Cottam, Physics Reports, 376 (2003). "Theory of elementary excitations in quasiperiodic structures".

Troisième partie

Méthode Modale Exacte

Chapitre 6

Théorie Modale Exacte - Formalisme

6.1 Introduction

Le problème de la diffraction par un réseau périodique peut être rigoureusement résolu par diverses méthodes numériques, notamment intégrales et différentielles [1]-[2]. Ces techniques peuvent être appliquées aux réseaux de profils quelconques, bien qu'elles puissent manifester des instabilités lorsqu'il s'agit d'étudier des surfaces métalliques à haute conductivité ou à corrugation profonde. On pourrait leur préférer des méthodes de calculs numériques plus courantes comme le calcul par Transformée de Fourier Rapide (FFT : *Fast Fourier Transform*), par la Fonction de *Green* (équations différentielles), ou encore par la méthode des éléments finis (FDTD : *Finite Domain Time Difference*). Malheureusement, ces méthodes ne permettent pas une exploration simple des mécanismes physiques en jeu dans les réseaux. Au contraire, la Méthode Modale consiste à rechercher le comportement "naturel" du champ électromagnétique dans une structure donnée. On établit alors une base de modes propres (ou de fonctions propres), *physiquement explicites*, dont le champ total est nécessairement une combinaison. Moyennant les conditions aux bords et celles d'incidence, il n'y a plus qu'à chercher le poids de chaque mode participant à la construction du champ. La réponse optique du système (apparition de résonances, anomalies de diffraction, etc.), peut alors s'expliquer en analysant les modes propres individuellement (le poids et l'allure spatiale de chacun d'eux).

Le traitement des réseaux de diffraction par la méthode modale n'est vraiment praticable que pour des géométries particulières, et les réseaux périodiques *lamellaires* en sont l'exemple par excellence. Dans ce cadre restreint, la méthode converge efficacement, aussi bien pour des diélectriques que pour des métaux faiblement ou fortement conducteurs, et pour des profondeurs de corrugations quelconques.

Dans la littérature concernant l'application de la théorie modale à des réseaux périodiques métalliques, l'article de Ping Sheng *et al* [3], publié en 1982, est très souvent cité comme référence en la matière. Cet article eut l'intérêt de proposer une approche quelque peu différente, limpide, avec une confrontation (manifestement concluante) avec l'expérience, mais on peut y noter un certain nombre d'erreurs et de zones d'ombre.

D'autre part, les australiens Botten, Craig, McPhedran, Adams, et Andrewartha, avaient publié, l'année précedénte, un ensemble de travaux théoriques très avancés. Ces derniers avaient en effet exposé le formalisme modal pour les réseaux lamellaires diélectriques [4], les réseaux métalliques *à pertes*, faiblement et hautement conducteurs [5]-[6], les réseaux à gravures semi-circulaires [7], et ont finalement proposé une théorie modale générale pour des réseaux en réflexion, parfaitement conducteurs, de profil arbitraire [8][1], tout cela en 1981. Des articles complémentaires, écrits par ces mêmes auteurs, sont apparus par la suite ([9], [10]), conjointement aux travaux rapportés par Suratteau, Cadilhac et Petit [11], Tayeb et Petit [12], puis plus récemment, par Lifeng Li [13] et Davidson [14] (pour ne citer qu'eux).

En 1993, justement, Lifeng Li [13] reprend les travaux établis par Botten *et al*, et étend l'exploitation de la Méthode modale aux réseaux de diffraction diélectrique et métallique soumis à l'incidence dite "conique" (onde excitatrice arrivant avec un angle polaire et un angle azimutal), ce qui nécessite alors de décomposer le champ électromagnétique, dans la région stratifiée, suivant 2 bases orthogonales.

En 2003, Davidson [14] propose un modèle modal généralisé, et flexible dans le sens où il pouvait s'appliquer à des réseaux lamellaires ayant un nombre quelconque de cellules par période (matériaux au choix), en incidence conique ou non. Sa méthode comprend quelques variantes et définit une nouvelle norme pour les modes propres. Il souligne également que l'étude de systèmes à constante diélectrique élevée en module ou ayant des structures à grande taille (comparativement à la longueur d'onde) exige une précision numérique particulièrement poussée, problème que je confirme pour ma part.

Il n'en reste pas moins qu'à la lecture de ces diverses publications, quelque chose manque de manière marquante, à mon sens : c'est que les auteurs ne donnent *jamais* de *signification physique* tant aux valeurs propres qu'aux modes propres du système (la nature fondamentale et les courbes de dispersion des modes ne sont pas abordés), un fait plutôt paradoxal étant donné le choix de la méthode... On peut être également étonné par l'absence, dans ces articles, de cartographies spatiales du champ proche électromagnétique (calculées par cette méthode), quand on sait qu'elles correspondent à une reconstruction modale très parlante physiquement, et permettent, non seulement de constater les bonnes convergence et continuité des champs en tout endroit de l'espace, mais aussi de valider un certain nombre de spéculations tirées des spectres de réflectivité observés.

Au cours de la thèse, j'ai mis au point l'utilisation numérique de la méthode modale exacte (MME) pour les réseaux métalliques à pertes (de constante diélectrique complexe), avec la volonté de pallier, disons, le "vide" théorique mentionné au paragraphe précédent (et qui fera l'objet du chapitre suivant). J'ai donc repris en détail le formalisme général exposé dans les travaux de Botten *et al* [4] et de Sheng *et al* [3],

[1] Le développement modal exposé dans [8] incorporait une certaine condition d'impédance et a été appliqué aux réseaux de gravures de forme triangulaire, sinusoïdale et semi-circulaire, pour les deux polarisations fondamentales, mais rencontrait vite des instabilités numériques pour des profils profonds. Pour les profils quelconques, les méthodes classiques semblent préférables.

avec des compléments plus personnels et une extension aux réseaux à deux cavités par période. Au cours de ce Chapitre 6, je ferai une présentation assez exhaustive des concepts mathématiques, discuterai des points souvent délicats qu'on peut rencontrer et fournirai autant que possible des interprétations physiques sur les éléments avec lesquels on travaille. Le Chapitre 7 portera sur l'exploitation numérique du formalisme modal. De nombreux graphes et quelques cartographies de champ seront illustrés et expliqués. Il faut préciser d'ailleurs que le programme informatique que j'ai écrit pour la méthode modale a été testé (positivement) en comparant ce qu'il donne avec des résultats obtenus *via* d'autres techniques et publiés dans la littérature [15]-[16] (voir l'Annexe, page 242).

Qu'entend-on au juste par développement modal ? Partant d'une équation de Helmoltz sous la forme $\Delta u + k^2\varepsilon(x)u = 0$, la technique consistant à décomposer le champ électromagnétique u (dont on prouve d'abord qu'il est nécessairement pseudo-périodique) et la constante diélectrique $\varepsilon(x)$ chacun en *séries de Fourier*, nous ramènerait à un système d'équations linéaires homogènes (et finalement à un problème aux valeurs propres). Mais les modes propres trouvés par ce procédé sont purement mathématiques et *ne correspondent pas à des modes physiques*, donnés, eux, par la *méthode modale exacte*. La décomposition en séries de Fourier a certes l'avantage de pouvoir s'appliquer à des profils périodiques quelconques, mais semble plus appropriée pour des profils de structure ne présentant pas de discontinuités (marches, coins, etc), sans quoi le rang du système d'équations doit être élevé, étant donné la lente convergence des séries. Les vrais modes propres du système sont directement issus des équations de Maxwell appliquées au sein de la structure périodique, et s'expriment tous sous forme analytique, comme nous allons le voir en détail.

6.2 Présentation générale de la théorie

6.2.1 Schéma et principe de la méthode

La méthode modale consiste à mettre en exergue l'existence et l'allure exacte des différents *modes propres* d'un champ électromagnétique au sein d'une structure donnée (en fait, d'une distribution spatiale de la constante diélectrique). Ces modes constituent une base comportementale sur laquelle un champ quelconque peut alors se décomposer, moyennant certaines conditions aux limites.

Dans l'approche modale du réseau unidimensionnel à profil rectangulaire (voir Figure 6.1), le sens de stratification prioritaire à considérer est donné par l'axe des x. On est alors appelé, dans un premier temps, à connaître les modes propres du champ dans un empilement infini, mais régulier, de couches diélectriques et/ou métalliques, en ignorant ce qui se trouve au-dessus et au-dessous du réseau. Il en sort toute une base de fonctions d'onde de x (les futures $X_l(x)$), très significatives physiquement, sachant que *toute* l'information nécessaire est contenue dans le seul motif périodique. Le vecteur d'onde k_y (que plus tard nous désignerons par Λ), se conservant au passage de chaque interface horizontale (I/II et II/III), c'est lui qui caractérisera précisément

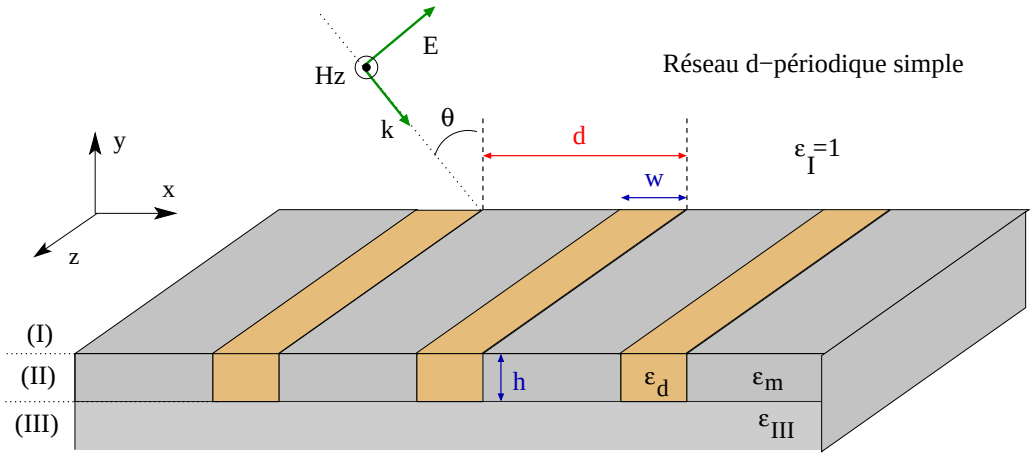


FIG. 6.1 – Schéma annoté d'un réseau lamellaire d-périodique, soumis à la lumière polarisée TM. Il s'agit d'un empilement régulier de couches alternativement diélectriques (cavités) et métalliques (il peut cependant s'agir de diélectriques partout, ce qui reviendrait à un cristal photonique 1D). La région III est transmissive si ε_{III} est positive (réseau de fentes).

chaque mode propre à l'échelle de tout le système stratifié. La recherche des modes propres est *indépendante* de la profondeur h du réseau ou des constantes diélectriques des régions I et III.

Une fois que la base modale du champ dans le réseau est établie, on peut considérer, cette fois, la "stratification" dans le sens des y, c'est-à-dire de raccorder entre eux les champs des régions supérieure (I), médiane (II) et inférieure (III) de notre système. Les champs électromagnétiques des régions (I) et (III) (régions continues et homogènes) seront exprimés par de classiques développements de Rayleigh (décomposition sur une base d'ondes planes harmoniques). Les équations de raccord obtenues sont ensuite *projetées* de manière rigoureuse, sur la base modale du réseau et/ou la base de Rayleigh, afin d'obtenir un système d'équations modales, indépendant des variables d'espace. La résolution du système nécessitera de tronquer le rang du système. Les solutions correspondent alors aux *poids* de chaque mode participant au développement Modal et au développement de Rayleigh.

Toute la difficulté de la méthode exacte repose sur la recherche de la base complète des modes propres du milieu stratifié. Les fonctions propres sont caractérisés par un vecteur d'onde $k_y = \Lambda$ (cf Chapitre 2), qui doit vérifier obligatoirement une équation transcendante (l'équation aux valeurs propres). Ce qui complique fortement le problème est la nature *complexe* de la constante diélectrique dans le cas des métaux à pertes. L'équation transcendante est alors à racines complexes et la base des fonctions propres n'est pas orthogonale. L'étape de projection, mentionnée dans le paragraphe précédent, nécessitera une attention particulière.

6.2.2 Equations de Maxwell

En reprenant toutes les équations de Maxwell, on peut montrer que, dans un milieu décrit par une permittivité diélectrique relative $\varepsilon(\vec{r})$ et une perméabilité relative $\mu(\vec{r})$, en l'absence de source extérieure de charge électrique ou de courant, les champs électromagnétiques $\vec{H}$ et $\vec{E}$, variant harmoniquement dans le temps en $\mathbf{e^{-i\omega t}}$, vérifient les équations de propagation suivantes :

$$\vec{\Delta}\vec{E} + \mu(\vec{r})\varepsilon(\vec{r})k^2\vec{E} = \overrightarrow{grad}\ (div\ \vec{E})(\frac{1}{\mu(\vec{r})}(\overrightarrow{grad}\mu(\vec{r})) \wedge \overrightarrow{rot}\ \vec{E} \tag{6.1}$$

$$\vec{\Delta}\vec{H} + \mu(\vec{r})\varepsilon(\vec{r})k^2\vec{H} = \overrightarrow{grad}\ (div\ \vec{H}) - \frac{1}{\varepsilon(\vec{r})}(\overrightarrow{grad}\varepsilon(\vec{r})) \wedge \overrightarrow{rot}\ \vec{H} \tag{6.2}$$

Où $\boxed{k = \frac{\omega}{c}}$ est le module du vecteur d'onde, ω la pulsation des champs et c la célérité de la lumière dans le vide ($c^2 = \frac{1}{\mu_0\varepsilon_0}$). Nous étudions des réseaux lamellaires unidimensionnels. Vu le système d'axes que l'on s'est choisi, les champs sont invariants suivant z. En polarisation TM, on a :

$$\vec{H} = H_z(x,y)\vec{e}_z \quad \text{et} \quad \vec{E} = E_x(x,y)\vec{e}_x + E_y(x,y)\vec{e}_y$$

Dans une structure *non magnétique* ($\mu(\vec{r}) = 1$), caractérisée par une distribution spatiale de la constante diélectrique relative $\varepsilon(x)$, le champ magnétique polarisé vérifie :

$$\frac{\partial^2 H_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 H_z}{\partial y^2} + \varepsilon(x)k^2 H_z = \frac{1}{\varepsilon(x)} \cdot \frac{d\varepsilon}{dx} \cdot \frac{\partial H_z}{\partial x} \tag{6.3}$$

La seule connaissance de H_z résout entièrement le problème électromagnétique puisque $\overrightarrow{rot}\vec{E} = i\omega\mu_0\vec{H}$.

6.2.3 Champs dans les régions homogènes I et III : développement de Rayleigh

Dans les régions homogènes I et III (situées au-dessus et en-dessous du réseau), la permittivité relative $\varepsilon(x)$ est constante. On est alors ramené à une classique équation de Helmoltz. Les solutions générales sont de la forme $e^{ik_x x + k_y y}$, avec $k_x^2 + k_y^2 = k^2$. Les modes propres de ces régions, pris isolément, forment donc *a priori* un continuum d'ondes planes, comme déjà vu au Chapitre 2. Cependant, ces régions ont toutes les deux une frontière périodique (le réseau). En se donnant alors une onde source $e^{ik(\sin\theta x - \cos\theta y)}$, arrivant avec un angle d'incidence θ sur la frontière périodique, le continuum peut d'emblée être discrétisé en la base bien connue des modes de Rayleigh. Moyennant la condition "d'ondes planes sortantes" (toute autre onde provient du réseau et ne diverge pas en module), les champs réfléchis et transmis par le réseau s'écrivent comme une somme d'ondes de Bloch, pseudo-périodiques.

Les champs magnétiques des régions I (d'indice optique 1) et III (d'indice optique quelconque n_{III}) s'expriment alors comme suit : pour tout x,

$$\begin{cases} \forall y > 0, \quad H_z^I(x,y) = e^{ik(\gamma_0 x - \eta_0^I\ y)} + \sum_{n=-\infty}^{+\infty} R_n\ e^{ik(\gamma_n x + \eta_n^I\ y)} \\ \\ \forall y < -h, \quad H_z^{III}(x,y) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} T_n\ e^{ik(\gamma_n x - n_{III}(y+h)\ \eta_n^{III})} \end{cases}$$

Où d est la période du réseau.

$$\gamma_n = \sin\theta + n\frac{2\pi}{d} \quad et \quad \begin{cases} \eta_n^I = \sqrt{1-\gamma_n^2} \\ \eta_n^{III} = \sqrt{1-(\frac{\gamma_n}{n_{III}})^2} \end{cases}$$

R_n et T_n sont les amplitudes (complexes) des ondes planes respectivement réfléchies et transmises.

La base discrète d'ondes planes, commune aux régions (I) et (III), sera notée $(e_n(x))_{n\in\mathcal{Z}}$ où $\boxed{e_n(x) = e^{i\gamma_n x}}$ et appelée **base de Rayleigh**. Elle a l'avantage d'être *orthonormale* au sens du produit scalaire $\frac{1}{d}\int_d \bar{u}(x).v(x)dx$.

6.2.4 Champ dans le réseau périodique : développement modal

Dans la région II, cette fois, la constante diélectrique $\varepsilon(x)$ n'est pas constante mais continue par morceaux. Etant donné le profil rectangulaire du milieu, on peut *séparer les variables d'espace* et chercher la solution sous la forme $\boxed{H_z(x,y) = X(x)\cdot Y(y)}$. Il vient, pour tout x, et pour tout $y \in [0,-h]$:

$$\frac{1}{X}\frac{d^2X}{dx^2} + \varepsilon(x)k^2 - \frac{1}{\varepsilon(x)}\cdot\frac{d\varepsilon}{dx}\cdot\frac{1}{X}\cdot\frac{dX}{dx} = -\frac{1}{Y}\frac{d^2Y}{dy^2}$$

Par conséquent, les 2 membres de l'équation obtenue ne peuvent qu'être égaux à une même *constante*. Notons-la Λ^2, de sorte que :

$$\frac{1}{Y}\frac{d^2Y}{dy^2} = -\Lambda^2 \Rightarrow \boxed{Y(y) = Ae^{i\Lambda y} + Be^{-i\Lambda y}}$$

Cela veut donc dire que $\boxed{\Lambda^2 = k_y^2}$ et que le vecteur tangentiel k_y *se conserve au passage des interfaces verticales* du réseau. Il reste alors[2] :

$$\varepsilon(x)\cdot[\frac{d}{dx}(\frac{1}{\varepsilon(x)}\frac{dX}{dx}) + k^2X] = \Lambda^2 X \tag{6.4}$$

En introduisant naturellement l'opérateur différentiel

$$\mathcal{L}_x = \varepsilon(x)\cdot[\frac{d}{dx}(\frac{1}{\varepsilon(x)}\frac{d}{dx}) + k^2]$$

[2]Vu l'équation différentielle obtenue, si la constante diélectrique $\varepsilon(x)$ est à valeurs réelles, la constante Λ^2 sera également réelle (mais Λ pourra être imaginaire). Enfin, si $\varepsilon(x)$ est à valeurs complexes, Λ^2 et Λ le seront également.

Il résulte que $\forall x$, $\boxed{\mathcal{L}_x X(x) = \Lambda^2 X}$. Autrement dit :

La fonction $X(x)$, qui décrit le champ magnétique suivant le sens de stratification du réseau, est une **fonction propre de l'opérateur linéaire** $\mathcal{L}_x$, associée à la **valeur propre** Λ^2 (*i.e.* le carré du vecteur d'onde k_y, qui se conserve aux interfaces des strates).

La distribution $\varepsilon(x)$ étant constante par morceau (la ligne frontère n'appartient physiquement ni à la zone métallique ni à cavité), l'équation (6.4) équivaut à une équation de Helmoltz pour chaque strate (métallique ou diélectrique) du réseau lamellaire :

$$\begin{cases} \frac{d^2X}{dx^2} + \beta^2 X = 0 \quad \text{dans le métal, avec} \quad \beta^2 = (\varepsilon_m k^2 - \Lambda^2) \\ \\ \frac{d^2X}{dx^2} + \alpha^2 X = 0 \quad \text{dans la cavité, où} \quad \alpha^2 = (\varepsilon_d k^2 - \Lambda^2) \end{cases}$$

Ces équations étant implicitement liées, en polarisation TM, par les continuités de $X(x)$ et de $\frac{1}{\varepsilon(x)}\frac{dX}{dx}$. La fonction $X(x)$ s'exprime donc sous une forme très générale :

$$\boxed{X(x) = C_i \cos(k_i(x - x_i)) + D_i \sin(k_i(x - x_i))}$$

Où l'indice i dénote la strate diélectrique considérée ($k_i = \alpha$ ou β, et x_i dépend du choix d'origine).

A ce stade, la constante Λ^2 appartenant au spectre de l'opérateur $\mathcal{L}_x$ est totalement inconnue. C'est que nous n'avons pas encore fait appel à la propriété de périodicité de $\varepsilon(x)$. En raccordant par continuité, les expressions de $X(x)$ et $\frac{1}{\varepsilon(x)}\frac{dX}{dx}$ de chaque strate d'une période donnée, et en usant de la propriété de pseudo-périodicité $X(x + d) = e^{ik \sin\theta d} X(x)$, on obtient une **équation auto-consistante sur** Λ^2 : le spectre de l'opérateur est *figé* par la périodicité.

La détermination exacte de l'amplitude complexe $X(x)$ est un problème mathématique difficile. Il existe en fait un ensemble infini dénombrable de valeurs propres Λ^2, toutes solutions d'une équation transcendante, fortement non-linéaire, que j'expliciterai plus loin, et qu'il faut absolument résoudre (ceci est vrai pour les polarisations TM et TE). Chaque racine Λ^2 caractérise un mode propre physique du réseau, à l'échelle de toute la structure périodique. On obtient alors une **base** discrète (infinie) de fonctions d'onde $\{X_l(x)\}_{l \geq 0}$ sur laquelle tout champ EM, dans le réseau, viendra se décomposer. L'expression de cette base est *indépendante de la profondeur* h du réseau. Finalement (on anticipe un peu sur le développement théorique qui va venir), l'expression scalaire du champ magnétique dans la structure périodique s'écrira :

$$\boxed{H_z^{II}(x, y) = \sum_{l \geq 0} X_l(x) \cdot (A_l e^{i\Lambda_l y} + B_l e^{-i\Lambda_l y})}$$

A_l et B_l sont les amplitudes (complexes) relatives au l^{ieme} mode propre du réseau.

6.2.5 Raccords aux interfaces, projections et résolution

L'expression générale des champs électromagnétiques étant déterminée dans chacune des 3 grandes régions de notre problème, il n'y a plus qu'à user des conditions de continuité aux interfaces horizontales, à savoir celles du champ magnétique Hz et du champ électrique tangentiel $E_x \propto \frac{1}{\varepsilon(x)}\frac{\partial H_z}{\partial y}$ en $y = 0$ et $y = -h$. La dépendance en h apparaît seulement à <u>ce</u> stade du problème.

<u>Relations de passage (Polarisation TM)</u>

$$H_z^I|_{x,y=0} = H_x^{II}|_{x,y=0}$$

$$H_z^{II}|_{x,y=-h} = H_z^{III}|_{x,y=-h}$$

$$\frac{\partial H^I}{\partial y}|_{x,y=0} = \frac{1}{\varepsilon(x)}\frac{\partial H^{II}}{\partial y}|_{x,y=0}$$

$$\frac{1}{\varepsilon(x)}\frac{\partial H^{II}}{\partial y}|_{x,y=-h} = \frac{1}{\varepsilon_{III}}\frac{\partial H^{III}}{\partial y}|_{x,y=-h}$$

Ces quatre équations[3] conservent une dépendance en x. Pour s'affranchir de cette dépendance spatiale, la technique consiste à *projeter convenablement chaque équation sur une base modale bien choisie* (base de Rayleigh ou base des modes propres du réseau). On l'appelle aussi méthode des moments. Nous obtenons de la sorte un système d'équations linéaires, reliant les coefficients inconnus des champs internes et externes au réseau (en l'occurrence R_n, T_n, A_l et B_l). On verra que ce système est simplement réductible à une équation matricielle globale, du type

$$\mathcal{M}\vec{\mathcal{A}} = \vec{\mathcal{V}}$$

où $\vec{\mathcal{A}}$ est le vecteur colonne des coefficients A_l et B_l, $\vec{\mathcal{V}}$ le vecteur colonne d'excitation (nul en l'absence d'onde incidente), et $\mathcal{M}$ la matrice de diffraction caractéristique du système. Il restera alors à inverser $\mathcal{M}$ pour résoudre le problème en sa totalité. La matrice nécessitera bien sûr d'être tronquée, et son rang correspondra au nombre de modes propres de réseau retenus (la bonne convergence des résultats numériques sera donc paramétrée par ce rang).

6.3 Le problème aux valeurs propres

6.3.1 Matrice de transfert du réseau

Pour déterminer le spectre de l'opérateur différentiel $\mathcal{L}$, introduit en page 130, il faut user de la propriété de pseudo-périodicité des champs magnétique <u>et</u> électrique à la fois[4]. Cela étant dit, nous n'allons pas traiter la question avec de pures équations

[3] En polarisation TE, il suffit de remplacer H_z par E_z et d'ôter les termes fractionnels en $1/\epsilon$.

[4] La relation $\mathcal{L}_{x+d}X(x+d) = \Lambda^2 X(x+d) \Rightarrow \mathcal{L}_{x+d}(e^{ikd\sin\theta}X(x)) = e^{ikd\sin\theta}\Lambda^2 X(x)$ ne suffit pas à obtenir la valeur propre.

différentielles.

En effet, on peut prouver (voir démonstration en Annexe, page 237) que si, dans le réseau, un mode propre $\boxed{H_z(x,y) = X(x) \cdot Y(y)}$, alors $\boxed{\exists V(x)/ \quad E_y(x,y) = V(x) \cdot Y(y)}$. En polarisation TM, la fonction d'onde $X(x)$ (respectivement $V(x)$) représente la composante du champ magnétique (respectivement électrique) *tangentielle* aux interfaces verticales.

L'équation différentielle (6.4), assez complexe, possède donc un équivalent matriciel pratique : le vecteur $Q(x) = \begin{bmatrix} X(x) \\ V(x) \end{bmatrix}$ est solution d'une équation du premier ordre

$$\vec{Q}'(x) = ik \begin{bmatrix} 0 & \varepsilon(x) \\ 1 - \frac{\Lambda^2}{k^2 \varepsilon(x)} & 0 \end{bmatrix} \cdot \vec{Q}(x)$$

L'introduction du vecteur colonne $\vec{Q}(x)$ n'est bien sûr pas anodine. Notre réseau est un milieu périodiquement stratifié, décrit par une permittivité relative $\varepsilon(x)$ constante par morceau. Chaque couche diélectrique ou métallique est alors représentable [17] par une *matrice de transfert caractéristique* M pouvant s'appliquer sur le vecteur Q :

Si x_1 et x_2 sont des coordonnées appartenant à une <u>même</u> strate de constante diélectrique ϵ, on a :

$$\vec{Q}(x_2) = M_\epsilon(x_2 - x_1) \cdot \vec{Q}(x_1)$$

Avec (en polarisation TM) :

$$M_\epsilon(x_2 - x_1) = \begin{bmatrix} \cos(k_x(x_2 - x_1)) & i\frac{\epsilon k}{k_x} \sin(k_x(x_2 - x_1)) \\ i\frac{k_x}{\epsilon k} \sin(k_x(x_2 - x_1)) & \cos(k_x(x_2 - x_1)) \end{bmatrix}$$

où :

$$k_x = (k^2\epsilon - k_y^2)^{\frac{1}{2}} = \begin{cases} \alpha = \sqrt{\varepsilon_d k^2 - \Lambda^2} & \text{dans la cavité} \\ \beta = \sqrt{\varepsilon_m k^2 - \Lambda^2} & \text{dans le métal} \end{cases}$$

Remarque : On peut facilement vérifier $Det(M_\epsilon) = 1$ et $M_\epsilon(x_2 - x_1) = M_\epsilon^{-1}(x_1 - x_2)$.

En généralisant, quelque soit la distance entre deux points d'abscisses $x = a$ et b d'un milieu stratifié, il existe une matrice T telle que $\vec{Q}(b) = T \cdot \vec{Q}(a)$ (et ce, quel que soit y). T est le produit ordonné[5] d'autant de matrices caractéristiques qu'il y a de strates entre ces points.

La relation matricielle entre les vecteurs $\vec{Q}$ pris aux deux extrêmités d'une période du réseau contient donc toute l'information *structurelle*. La matrice de transfert de toute une période sera appelée **matrice de tranfert du réseau**, et sera notée $\boxed{T}$.

=> Les coefficients explicites des matrices T d'un réseau d-périodique à 1 fente/période, et d'un réseau D-périodique à 2 fentes/période, sont détaillés en Annexe, page 237.

[5]Les matrices ne sont pas commutables, donc il faut veiller à effectuer le produit matriciel correctement. Notons bien que les conditions de continuité exigées aux interfaces verticales sont *comprises* dans le produit matriciel.

6.3.2 Equation aux valeurs propres

A) Formulation générale

Quand la matrice de tranfert d'un réseau est calculée, il n'y a plus qu'à effectuer un "bouclage" entre les points extrêmes de la période, en faisant appel aux propriétés d'*ondes de Bloch*. Considérant un réseau de période d et un angle d'incidence θ, il vient l'équation matricielle suivante[6] :

$$\vec{Q}(d) = T \cdot \vec{Q}(0) = e^{ikd\sin\theta} \cdot \vec{Q}(0)$$

L'origine des abscisses est arbitraire. La fréquence spatiale Λ^2, implicitement contenue dans les coefficients de T, et qui n'était toujours pas déterminée, trouve là une relation contraignante : la condition de pseudo-périodicité vient "figer" le spectre de l'opérateur. On obtient une **équation aux valeurs propres** d'inconnue Λ^2 :

$$\boxed{Det(T - e^{ikd\sin\theta} I) = 0}$$

$\vec{Q}(0) = \begin{bmatrix} X(0) \\ V(0) \end{bmatrix}$ est vecteur propre de T, défini à une constante multiplicative près. On peut, sans perte de généralité, chercher les vecteurs propres de T associés à la valeur propre $e^{ikd\sin\theta}$, sous la forme $\begin{bmatrix} 1 \\ V_0 \end{bmatrix}$ (cela revient à dire que toutes les fonctions propres sont identiquement initialisées à l'origine : $\forall l, X_l(x=0) = 1$). Il vient alors :

$$V_0 = \frac{e^{ikd\sin\theta} - T_{11}}{T_{12}} \tag{6.5}$$

Les coefficients T_{11} et T_{12} sont en Annexe, page 237. Le calcul direct à la main de $Det(T - e^{ikd\sin\theta} I)$ requiert patience et vigilance, car les termes manipulés sont de taille importante (voir Annexe). Cela se fait néanmoins. Une astuce permet de court-circuiter une partie des difficultés, elle consiste en ceci :

T étant une matrice 2×2 de déterminant unitaire, la connaissance d'une de ses valeurs propres, en l'occurrence $e^{ikd\sin\theta}$, conduit directement à la seconde, *i.e.* $e^{-ikd\sin\theta}$: sa diagonalisation sous la forme $\begin{pmatrix} \lambda_1 & 0 \\ 0 & \lambda_2 \end{pmatrix}$ exige en effet que $\lambda_1 = \lambda_2^{-1}$. Par conséquent, la trace de T n'est autre que $\lambda_1 + \lambda_2 = 2\cos(kd\sin\theta)$. Le signe de l'angle d'incidence θ se révèle indifférent dans l'équation aux valeurs propres Λ^2, mais ce sont seulement les vecteurs de T associés à $e^{ikd\sin\theta}$ qui nous intéresse. Pour des sous-structures périodiques de plus grande complexité, on gagnera donc du temps à employer l'égalité :

$$Tr(T) = 2\cos(kd\sin\theta) \tag{6.6}$$

[6] Il existe pareillement une matrice globale de transfert $S = T^{-1}$ telle que $\vec{Q}(0) = S \cdot \vec{Q}(d) = e^{-ikd\sin\theta} \cdot \vec{Q}(d)$.

B) Cas du réseau à 1 cavité par période

Considérons le réseau simple $d-$périodique déjà schématisé sur la Figure 6.1. En polarisation Magnétique Transverse, l'Equation aux Valeurs Propres (EVP) d'un tel réseau (comprenant deux couches/période d) s'écrit :

$$\cos(\alpha w)\cos(\beta(d-w)) - \frac{1}{2}[\frac{\alpha\varepsilon_m}{\beta\varepsilon_d} + \frac{\beta\varepsilon_d}{\alpha\varepsilon_m}]\sin(\alpha w)\sin(\beta(d-w)) = \cos(kd\sin\theta) \quad (6.7)$$

On rappelle que $\alpha = \sqrt{k^2\varepsilon_d - \Lambda^2}$ et $\beta = k\sqrt{k^2\varepsilon_m - \Lambda^2}$.

Le terme fractionnel peut se voir comme un *rapport d'impédances de surface*, à savoir $\frac{Z_d}{Z_m} + \frac{Z_m}{Z_d}$ ([7]). L'EVP peut aussi s'écrire comme suit :
$\cos(\alpha w + \beta(d-w)) - \frac{1}{2}[\frac{\alpha\varepsilon_m}{\beta\varepsilon_d} + \frac{\beta\varepsilon_d}{\alpha\varepsilon_m} - 2]\sin(\alpha w)\sin(\beta(d-w)) = \cos(k_{//}d)$

Commentaires Généraux sur l'EVP :

• Notons, par commodité, $F(\Lambda^2)$ le membre gauche de l'équation (6.7). Le membre de droite, lui, est directement lié aux conditions d'incidence. On a donc de manière réduite $\boxed{F(\Lambda^2) = \cos(k_{//}d)}$, notation que l'on réutilisera plus loin.

$F(\Lambda^2)$ est une fonction globalement oscillante, à ceci près que les termes trigonométriques peuvent prendre un caractère hyperbolique. Chaque fois que $F(\Lambda^2)$ prend la valeur $\cos(k_{//}d)$, on obtient une racine Λ^2 de l'EVP (un mode propre pseudo-périodique). On obtient ainsi un ensemble discret de solutions possibles. L'envoi d'une onde plane propagative implique nécessairement que le $\cos(k_{//}d)$ soit borné entre 1 et -1, tandis que $F(\Lambda^2)$ peut prendre des valeurs très grandes. Le terme angulaire définit alors des **bandes photoniques permises** pour chaque mode propre.

• Si les constantes diélectriques étaient réelles, $F(\Lambda^2)$ et Λ^2 seraient aussi à valeurs réelles. Supposons $\varepsilon_m < 0$. On peut distinguer 3 grands régimes de variations de $F(\Lambda^2)$:

- $(\Lambda/k)^2 > \varepsilon_d$: alors α et $\beta \in \mathcal{C}$ et on a un comportement hyperbolique, avec une divergence quand $\Lambda^2 \gg 0$.
- $\varepsilon_m < (\Lambda/k)^2 < \varepsilon_d$: alors $\alpha \in \mathcal{R}$ et $\beta \in \mathcal{C}$ et on a un régime oscillatoire, mais avec des amplitudes de variations pouvant être extrêmement grandes.
- $(\Lambda/k)^2 < \varepsilon_m$: alors $\alpha \in \mathcal{R}$ $\beta \in \mathcal{R}$ et on a des oscillations d'amplitudes modérées. $F(\Lambda^2)$ ne diverge pas quand $\Lambda^2 \to -\infty$ et va donc osciller autour de l'axe des réels un nombre infini de fois.

[7] En polarisation TE, l'équation aux valeurs propres s'écrit
$\cos(\alpha w)\cos(\beta(d-w)) - \frac{1}{2}[\frac{\alpha}{\beta} + \frac{\beta}{\alpha}]\sin(\alpha w)\sin(\beta(d-w)) = \cos(kd\sin(\theta))$
équation encore compatible avec une formule en rapports d'impédance. Il est intéressant de noter que dans cette polarisation, l'EVP est *identique* à celle qu'on rencontre dans le modèle de **Kronig-Penney** pour les électrons pris dans un potentiel d-périodique. En physique quantique, les fonctions d'onde des électrons sont l'analogue du champ électrique des photons polarisés TE

C'est ce que les simulations ultérieures vont montrer. On verra à quel mode physique correspondent les racines appartenant à tel ou tel grand domaine de Λ^2. Je renvoie le lecteur à la Figure 2.4 du Chapitre 2 pour visualiser l'allure schématique des modes.

• D'autre part, si l'on fait tendre la largeur de fente w vers 0, on est conduit à l'égalité $\cos(\beta d) = \cos(kd\sin(\theta))$, laquelle implique $\boxed{\beta = k\sin(\theta) + n\frac{2\pi}{d}}$: c'est la relation "classique" du réseau de diffraction[8].

L'intérêt de cette remarque réside dans le fait simple qu'en *augmentant la période* d du système, les modes propres auront des *valeurs associées de plus en plus resserrées* entre elles (l'équation devient plus rapidement oscillante), ce qui se comprend physiquement, puisqu'à la limite où $d \to \infty$, on perd la propriété de périodicité (donc la discrétisation en bandes permises) pour retrouver un **continuum** d'ondes (propagatives et évanescentes) pouvant potentiellement apparaître dans le système (c'est le problème d'une cavité isolée dont j'ai parlé dans le Chapitre 2).

• Enfin, l'équation aux valeurs propres ne doit pas être résolue en Λ mais en Λ^2. Les racines Λ^2 seront toutes *réelles* (positives ou négatives) si les constantes diélectriques figurant dans l'EVP sont réelles. Si une des constantes diélectriques du réseau (ε_d ou ε_m), possède une partie imaginaire, alors les racines de l'EVP en auront également une. Le spectre (discret et infini) des racines, $\{\Lambda_l^2\}_{l\geq 0}$, sera donc arrangé suivant la relation d'ordre naturelle $\boxed{-\infty < \Re(\Lambda_n^2) < ... < \Re(\Lambda_1^2) < \Re(\Lambda_0^2) < +\infty}$: Λ_0^2 correspondra donc au mode *fondamental*. Une solution Λ^2, éventuellement complexe, correspondra à *un seul* mode propre (le passage à la racine Λ est défini de manière univoque[9]).

C) Cas du réseau à 2 cavités par période

Un réseau à deux fentes par période est, du point de vue structurel, un réseau à 4 couches par période. Afin de ne pas confondre ce cas avec celui du réseau simple, on notera sa période D. Cette période comprend 2 fentes identiques, de largeur w, et de constante diélectrique ε_d, ainsi que 2 strates métalliques de même constante ε_m mais de largeurs *a priori* différentes, notées L_1 et L_2, comme l'illustre la Figure 6.2. La période vaut donc $D = L_1 + L_2 + 2w$.

Après calcul, j'établis que l'équation aux valeurs propres d'un tel réseau, en polarisation TM, est la suivante :

$$\cos(2\alpha w)\cos(\beta(L_1+L_2)) - \frac{1}{2}[\frac{\alpha\varepsilon_m}{\beta\varepsilon_d} + \frac{\beta\varepsilon_d}{\alpha\varepsilon_m}]\sin(2\alpha w)\sin(\beta(L_1+L_2)) + \\ +\frac{1}{2}[\frac{\alpha\varepsilon_m}{\beta\varepsilon_d} - \frac{\beta\varepsilon_d}{\alpha\varepsilon_m}]^2 \cdot \sin^2(\alpha w)\sin(\beta L_1)\sin(\beta L_2) = \cos(kD\sin(\theta)) \qquad (6.8)$$

[8]En prenant $\varepsilon_d = \varepsilon_m$, i.e. $\alpha = \beta$ (réseau "fantôme"), on est conduit pareillement à la relation classique du réseau

[9]On convient que la racine d'un nombre complexe z est systématiquement : $(z)^{1/2} = \sqrt{|z|}e^{iarg(z)/2}$. Si on considérait que Λ^2 formait une paire de racines Λ conjuguées, on verrait de toute façon que les 2 Λ donnerait exactement la même fonction propre (l'expression des fonctions propres, en page 139, dépend de Λ^2 et non de Λ).

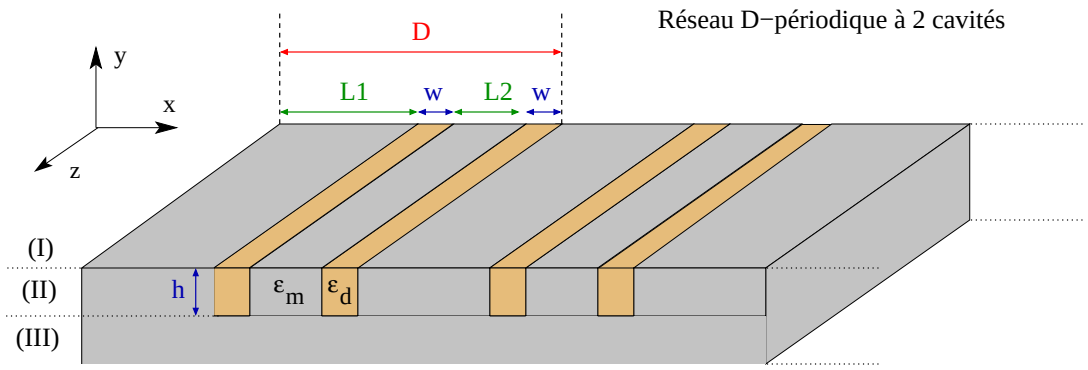


FIG. 6.2 – Schéma du réseau à deux cavités (ou fentes, si la région III est transmissive) par période.

D'autres formulations sont possibles mais l'augmentation de la complexité intrinsèque de l'équation va inévitablement de pair avec celle de la structure étudiée. On remarquera la grande similitude du membre de gauche de (6.8) avec celui de l'équation (6.7), en dehors d'un nouveau terme quadratique. Les commentaires généraux faits sur (6.7) sont également valables ici. Les amplitudes de variation du membre gauche de 6.8 peuvent, cependant, être beaucoup plus importantes que celles de (6.7) si les termes trigonométries deviennent hyperboliques.

On peut vérifier qu'en prenant $L_1 = 0$ ou $L_2 = 0$, on retombe logiquement sur le cas du réseau simple (avec une fente de largeur $2w$ puisqu'une des strates métalliques a disparu). De même, en prenant $L_1 = L_2$, on doit retrouver les valeurs propres d'un réseau simple, de période minimale $d = D/2$ cette fois[10]

Si $L_1 \approx L_2$, l'équation aux valeurs propres va fournir des racines quasiment *dégénérées*. Il faut donc s'attendre à trouver des **paires de racines** voisines dans ce type de structure. La dégénérescence sera d'autant mieux levée que les largeurs des 2 strates métalliques seront différentes, autrement dit, quand il y aura un contraste dans le jeu de distances (L_1, L_2) de la sous-structure périodique. Cette levée de dégénérescence provient physiquement du *couplage électromagnétique* des 2 cavités au sein de la période. Dans les réseaux métalliques tels que $\Re(\varepsilon_m) << 0$, le couplage est plus ou moins barré par la hauteur de potentiel qu'incarnent les épaisseurs de métal. Il est donc recommandé de travailler sur des géométries où une des longueurs L_1 et L_2 soit suffisamment petite, de sorte que les champs de cavités "se voient" un peu à travers l'une des strates.

[10] J'arrive en effet, à établir que, dans ce cas particulier, $Evp_1^2 = (1 + Evp_2)/2$ où Evp_1 et Evp_2 désignent respectivement les membres de gauche des équations (6.7) et (6.8) obtenues pour le réseau simple de période d d'une part, et le réseau à 2 fentes de période $D = 2d$ d'autre part. Par conséquent, si on vérifie $Evp_2 = \cos(kD\sin\theta)$, on vérifie aussi $Evp_1 = \cos(kD\sin(\theta)/2)$

6.3.3 Cas particulier de l'incidence normale

Des manipulations très utiles sur les équations aux valeurs propres peuvent être faites dans le cas important de l'incidence normale : l'EVP (6.7) obtenue pour le réseau simple peut se scinder en 2 sous-équations transcendantes plus simples. Le contenu de cette sous-section vaudra non seulement quand $\theta = 0$, mais plus généralement quand $kd \sin\theta = 2p\pi$, (Littrow d'ordre p).

Reprenons la notation pratique $F(\Lambda^2)$ introduite en page 135. On peut montrer sans difficulté, en s'aidant des relations trigonométriques $\sin(t/2)\cos(t/2) = \sin t/2$ et $\cos t = 1 - 2\sin^2(t/2)$, que la quantité $F(\Lambda^2) - \cos(kd\sin\theta)$ se factorise ainsi :

$$(\tfrac{2}{\alpha\varepsilon_m \cdot \beta\varepsilon_d}) \times [\beta\varepsilon_d \cos(\beta(d-w)/2) \cdot \sin(\alpha w/2) + \alpha\varepsilon_m \sin(\beta(d-w)/2) \cdot \cos(\alpha w/2)]$$

$$\times[\alpha\varepsilon_m \cos(\beta(d-w)/2) \cdot \sin(\alpha w/2) + \beta\varepsilon_d \sin(\beta(d-w)/2) \cdot \cos(\alpha w/2)] - 2\sin^2(kd\sin\theta/2)$$

Cette expression est mathématiquement lourde mais on peut voir qu'en incidence normale ($\theta = 0$), elle nous conduit immédiatement à résoudre la paire d'équations suivantes :

$$\alpha\varepsilon_m \cos(\beta(d-w)/2) \cdot \sin(\alpha w/2) + \beta\varepsilon_d \sin(\beta(d-w)/2) \cdot \cos(\alpha w/2) = 0 \tag{6.9}$$

$$\frac{\cos(\beta(d-w)/2) \cdot \sin(\alpha w/2)}{\alpha\varepsilon_m} + \frac{\sin(\beta(d-w)/2) \cdot \cos(\alpha w/2)}{\beta\varepsilon_d} = 0 \tag{6.10}$$

J'ai volontairement écrit la deuxième égalité en somme de fractions, de sorte que les 2 équations soient à valeurs réelles si $\varepsilon_m \in \mathcal{R}$ (car alors, quelque soit Λ^2, α et β sont purement réels ou purement imaginaires). Ce genre de réflexe a son intérêt pour le traitement numérique à venir et permet une bonne représentation graphique[11].

Les racines de l'équation (6.9), on va le voir, correspondent à des fonctions propres strictement **paires** par rapport à l'un ou l'autre des axes de symétrie de la structure périodique, tandis que l'équation (6.10) donne les valeurs propres de fonctions strictement **impaires**. C'est spécifique au cas l'incidence normale (ou du Littrow d'ordre p).

Les racines d'une sous-équation ne vérifient visiblement pas l'autre sous-équation (sauf coïncidence exceptionnelle dans les paramètres opto-géométriques). On peut alors espérer qu'elles ne soient pas dégénérées mais simples, représentation graphique à l'appui. Nous voyons là le grand intérêt de raisonner préférentiellement sur les 2 sous-équations (6.9) et (6.10) plutôt que sur l'équation globale (6.7) : *en séparant les racines*, on s'affranchit autant que possible de sérieux problèmes de résolution numérique dans le cas où les valeurs propres se présenteraient sous la forme de doublets de racines "paire/impaire" très reserrés. On s'attend en effet à ce que les solutions "paires" et "impaires" se succèdent au fur et à mesure que l'on va chercher des valeurs de rang

[11] La mise sous fraction n'introduit aucune divergence théorique car $\lim_{x\to 0} \sin x/x = 1$ pour le cas où α ou β tendent vers 0.

élevé, mais rien n'indique qu'il y ait une alternance systématique.

Malgré cette précaution, il se peut tout à fait que chaque sous-équation conserve une complexité fâcheuse, même pour ε_m réelle, ce à quoi on est justement confronté dans le cas de réseaux métalliques à grande période.

Contrairement au cas du réseau à 1 fente/période, je n'ai trouvé aucune factorisation pratique de l'EVP globale (6.8) du réseau à 2 fentes, à $\theta = 0$, ce qui est dommage étant donné le fort soupçon sur l'existence de paires de racines très proches. Ce problème est néanmoins atténué par le fait que l'équation (6.8) est à variations de plus grande amplitude, si bien que la technique de détection des racines (éventuellement complexes) converge parfois plus rapidement que pour (6.7).

6.4 Fonctions propres du réseau

6.4.1 Formulation générale

Chaque fonction propre $X_l(x)$, associée à sa valeur propre Λ_l^2, vérifie l'équation différentielle $\mathcal{L}_x X_l(x) = \Lambda_l^2 X_l(x)$, $l \geq 0$.

Reprenant le formalisme de la section 6.3.2, on a, pour une valeur propre Λ^2 donnée, un vecteur $\vec{Q}(0) = \begin{bmatrix} X(0) \\ V(0) \end{bmatrix}$ parfaitement déterminé (on rappelle que $V(x)$ est la fonction d'onde du champ E_y en polarisation TM). Les fonctions propres sont toutes *normalisées à l'unité en l'origine O du repère choisi*[12], c'est-à-dire le long d'une frontière verticale délimitant le début d'une période : $X(0) = 1$. Enfin, V_0 est donnée par l'équation (6.5). Par conséquent, de la relation de transfert $\vec{Q}(x) = M_\epsilon(x) \cdot \vec{Q}(0)$ (voir section 6.3.1 sur les matrices de transfert M_ϵ), on tire l'expression générale de chaque fonction $X_l(x)$ dans la première strate du réseau, et chemin faisant, celle des fonctions dans les strates suivantes de la période (d'ailleurs, on obtient également les champs électriques $V_l(x)$).

Les fonctions propre $X_l(x)$ s'expriment alors sous la forme générale $\boxed{A_i \cos(k_i(x - x_i)) + B_i \sin(k_i(x - x_i))}$ où l'indice i indice la strate diélectrique considéré ($k_i = \alpha$ ou β, et x_i est l'origine de la strate). Autrement dit, les fonctions vérifient toute une équation de Helmoltz en x, adaptée à chaque strate du réseau.

[12] Cette initialisation n'est pas hasardeuse, je tiens à le souligner. Traiter avec des fonctions propres précautionneusement normalisées au **coin** même de la structure, là où justement la convergence serait *a priori* la plus délicate (voir les méthodes de décomposition en série de Fourier), permet de réduire au maximum l'introduction d'éventuelles singularités aux bords. De plus, en choisissant cette norme, les fonctions propres conservent des amplitudes du même ordre de grandeur sur toute la période (ce qui est loin d'être le cas en normalisant à 1 en plein coeur du métal !). On fait ainsi de l'origine O un point de jonction de toutes les bases ($\forall l \geq 0, \forall n, X_l(0) = 1 = e_n(0)$).

6.4.2 Réseau à une cavité

Les fonctions propres (champs magnétiques), au sein d'une période d de référence, se formulent comme suit[13] :

$$X_l(x) = \left| \begin{array}{ll} \cos(\beta_l x) + i\frac{k\varepsilon_m}{\beta_l} V_0^l \sin(\beta_l x) & \text{si } 0 < x < (d-w) \\ \\ U_1^l \cos(\alpha_l(x-(d-w))) + i\frac{k\varepsilon_d}{\alpha_l} V_1^l \sin(\alpha_l(x-(d-w))) & \text{si } (d-w) < x < d \end{array} \right.$$

Avec $\alpha_l^2 = k^2\varepsilon_d - \Lambda_l^2$ et $\beta_l^2 = k^2\varepsilon_m - \Lambda_l^2$.
V_0^l est donné par l'équation (6.5) page 134, et $U_1^l = X_l(d-w)$.

Cette formulation générale ne doit pas cacher le fait que les cos et sin peuvent devenir des cosh et sinh selon la valeur propre associée[14]. Les $X_l(x)$ peuvent donc avoir des allures respectives très différentes.

Il est bon de noter (cela se vérifie à la main) qu'en *incidence normale* ($\theta = 0$), si les constantes diélectriques du réseau (ε_m et ε_d) sont purement *réelles*, alors, quelle que soit Λ^2 (réelle elle aussi), α et β sont réels ou imaginaires purs et toutes les fonctions propres sont également à valeurs *réelles*.

Enfin, chaque mode propre d'indice l est également associé à un champ électrique : les termes $V_l(x)$ sont les fonctions d'ondes décrivant le comportement, suivant x, du champ E_y associé, et s'expriment comme :

$$V_l(x) = \left| \begin{array}{ll} V_0^l \cos(\beta_l x) + i\frac{\beta_l}{k\varepsilon_m} \sin(\beta_l x) & \text{si } 0 < x < (d-w) \\ \\ V_1^l \cos(\alpha_l(x-(d-w))) + i\frac{\alpha_l}{k\varepsilon_d} U_1^l \sin(\alpha_l(x-(d-w))) & \text{si } (d-w) < x < d \end{array} \right.$$

6.4.3 Réseau à deux cavités

On notera préférentiellement D la période du réseau. Les fonctions propres sont cette fois :

$$X_l(x) = \left| \begin{array}{ll} \cos(\beta_l x) + i\frac{k\varepsilon_m}{\beta_l} V_0^l \sin(\beta_l x) & \text{si } 0 < x < (D-w) \\ \\ U_1^l \cos(\alpha_l(x-x_1)) + i\frac{k\varepsilon_d}{\alpha_l} V_1^l \sin(\alpha_l(x-x_1)) & \text{si } x_1 < x < x_2 \\ \\ U_2^l \cos(\beta_l(x-x_2)) + i\frac{k\varepsilon_m}{\beta_l} V_2^l \sin(\beta_l(x-x_2)) & \text{si } x_2 < x < x_3 \\ \\ U_3^l \cos(\alpha_l(x-x_3)) + i\frac{k\varepsilon_d}{\alpha_l} V_3^l \sin(\alpha_l(x-x_3)) & \text{si } x_3 < x < d \end{array} \right.$$

[13] On peut facilement vérifier la continuité de $X_l(x)$ et $\frac{1}{\varepsilon(x)}\frac{dX_l(x)}{dx}$ au passage de l'interface $x = d-w$, ainsi que leur pseudo-périodicité.

[14] Le cas où les termes hyperboliques sont *très grands* en module peut entraîner des erreurs de calculs fatales pour l'exploitation de la méthode modale (fonctions propres discontinues aux bords, avec des divergences dans le métal, etc.). Il s'avère d'ailleurs que la fonction propre du mode fondamental est la plus susceptible aux écarts numériques, et exige donc une surveillance particulière.

Avec $x_1 = L_1$, $x_2 = L_1 + w$ et $x_3 = L_1 + L_2 + w$, et :

$$U_1^l = \cos(\beta L_1) + i\frac{k\varepsilon_m}{\beta_l}V_0^l \sin(\beta_l L_1) \qquad V_1^l = i\frac{\beta_l}{k\varepsilon_m}\sin(\beta_l L_1) + V_0^l \cos(\beta_l L_1)$$

$$U_2^l = U_1^l \cos(\alpha_l w) + i\frac{k\varepsilon_d}{\alpha_l}V_1^l \sin(\alpha_l w) \qquad V_2^l = i\frac{\alpha_l}{k\varepsilon_d}U_1^l \sin(\alpha_l w) + V_1^l \cos(\alpha_l w)$$

$$U_3^l = U_2^l \cos(\beta_l L_2) + i\frac{k\varepsilon_m}{\beta_l}V_2^l \sin(\beta_l L_2) \qquad V_3^l = i\frac{\beta_l}{k\varepsilon_m}U_2^l \sin(\beta_l L_2) + V_2^l \cos(\beta_l L_2)$$

6.4.4 Considérations de symétrie

Dans le cas du réseau périodique simple, c'est-à-dire à 1 cavité par période, la distribution diélectrique $\varepsilon(x)$ possède toujours deux axes de symétrie (la médiatrice de la fente et celle du cran métallique séparant 2 fentes adjacentes). Si l'origine du repère est placée sur un de ces axes, l'opérateur $\mathcal{L}(x)$ est symétrique en sa variable d'espace x et les solutions de l'équation différentielle (6.4) sont soit **paires**, soit **impaires** par rapport à ces axes (la parité d'une fonction donnée vaut nécessairement pour les 2 axes à la fois). Pour une valeur propre Λ^2 donnée, la fonction propre **générale** est toujours une combinaison de 2 solutions linéairement indépendantes (1 fonction paire, 1 fonction impaire[15]). C'est la condition de pseudo-périodicité qui vient fixer les coefficients de cette combinaison.

Dans le cas de l'incidence normale, on le verra plus loin, les fonctions propres deviennent exclusivement paires ou impaires. D'après ces considérations de symétrie, seuls les modes propres pairs pourront être *effectivement excités* en incidence normale, puisque le champ d'excitation sera pair. On le vérifie bien numériquement. Cette remarque peut servir dans le cas où l'on veut travailler avec un nombre élevé de modes propres (on peut "sauter" tous les intermédiaires impairs qui n'auront pas de poids dans la réponse optique du sytème).

Pour un réseau possédant 2 fentes (de *même* largeur) par période, il existe également 2 axes de symétrie (médiatrices des 2 strates métalliques). Comme ils ne sont pas centrés sur les fentes mais entre elles, nous comprenons qu'au sein d'une même période, selon le mode propre en question, les 2 cavités peuvent être le siège de champs électromagnétiques égaux ou opposés entre eux (de là, l'émergence de nouvelles distributions de la lumière au sein du motif périodique...).

6.5 Espace vectoriel des modes propres et problème adjoint

On a montré que la condition de pseudo-périodicité sur les champs électromagnétiques fige le spectre de l'opérateur de champ $\mathcal{L}_x$ (ou $\mathcal{L}$) en un spectre discret, dont

[15] On peut s'en convaincre avec les $X_l(x)$ calculées précédemment, en plaçant l'origine des abscisses sur un des axes de symétrie. On distingue alors la composante paire de la composante impaire.

les valeurs propres sont nécessairement racines d'une même équation tanscendante. A la suite des valeurs $(\Lambda_l^2)_{l>0}$ correspond la famille $(X_l(x))_{l>0}$ des fonctions propres du champ dans le réseau (modes du champ magnétique, en polarisation TM). Cette famille constitue en fait une base électromagnétique dénombrable, de dimension infinie[16]. On peut donner à l'ensemble des fonctions propres une structure d'espace vectoriel par l'introduction d'un bon projecteur.

Cette étape théorique est cruciale. Comme expliqué en page 132, on doit effectuer la *projection* des équations de raccords entre les régions I, II et III, sur les différentes bases du système (base de Rayleigh et base Modale du réseau). Cette technique doit permettre d'**extraire sans équivoque** chacun des coefficients inconnus du problème, et doit opérer des projections *orthogonales*. Il est donc important, puisque le champ magnétique ne possède pas la même décomposition modale dans les régions I, II et III, de caractériser l'orthogonalité des bases et leur projecteur adéquat dans chaque région d'étude.

6.5.1 Définition du Projecteur

Le produit interne qui donne à l'ensemble des fonctions propres une structure d'espace vectoriel, est l'application à valeurs complexes, définie par ([5],[11]) :

$$\forall (u,v), < u|v >= \frac{1}{d}\int_0^d \frac{1}{\varepsilon(x)}\overline{u(x)}\cdot v(x)dx$$

Ou d désigne la période du réseau. Le choix de la fonction de poids $\frac{1}{\varepsilon(x)}$ découle naturellement de la forme de l'opérateur différentiel $\mathcal{L}_x$ en polarisation TM. En l'absence de cette fonction de poids (ce serait le cas pour la polarisation TE), on obtiendrait certes un produit scalaire classique, mais non pertinent, qui ne permettrait pas de travailler avec l'opérateur pour établir les propriétés qui vont suivre[17]. Avec le projecteur défini ci-dessus, on peut démontrer des propriétés tout à fait générales sur la valeur propre Λ^2, par exemple qu'en métal parfait, $(\Lambda/k)^2 \leq \varepsilon_d$ (voir Annexe, page 241).

Si $\varepsilon(x)$ est à valeurs *réelles*, on montre que l'opérateur $\mathcal{L}$ est **auto-adjoint** au sens du produit interne précédemment défini (voir démonstration en section suivante), c'est-à-dire $< \mathcal{L}u|u >=< u|\mathcal{L}u >$, en conséquence de quoi les valeurs propres sont réelles, et les fonctions propres associées orthogonales entre elles.

[16]La famille des fonctions propres $X_l(x)$ est évidemment "génératrice" du champ magnétique ; les fonctions, non dégénérées, variant comme $e^{\pm ik_x\cdot x}$ ($k_x = \alpha$ ou β), le caractère "libre" de la famille en découle. Il n'y a pas de fonction non-nulle, hormis celles *caractérisées par* l'équation aux valeurs propres, dont le champ magnétique puisse être une combinaison, ce qui assure *a priori* la "complétude" de la base. Seulement, dans le cas où $\varepsilon(x)$ est complexe, on aura besoin de faire appel à une base adjointe pour déterminer sans ambiguité chaque coefficient du développement modal.

[17]Même si ε est réelle, les fonctions $X_l(x)$ ne sont numériquement pas orthogonales *en l'absence* de la fonction de poids $1/\varepsilon(x)$ dans le produit interne (les simulations que j'ai faites donnent d'ailleurs des spectres de réponse chaotiques). C'est spécifique à la polarisation TM. $< u|v >$ n'est pas un produit scalaire hermitien (on n'a pas $< u|v >= \overline{< v|u >}$, ni forcément $< u|u >$ positif ou nul), sauf si ε est réelle *et* positive (cas des diélectriques sans perte) ou bien infinie (métal parfait).

Mais dans le cas d'une constante diélectrique *a priori* complexe, la famille des fonctions propres constitue une base modale dont il n'est plus permis de prouver qu'elle soit orthogonale. Or notre démarche est d'exprimer le champ magnétique total, dans le réseau, comme combinaison linéaire des fonctions propres $X_l(x)$:

$$\forall x \in [0,d], \quad H_z(x, y = cte) = \sum_{l=1}^{\infty} c_l \cdot X_l(x)$$

Il nous faut pouvoir définir la suite des coefficients c_l de manière *unique*, donc rechercher une base dénombrable judicieuse, qui soit rigoureusement orthogonale à la base $(X_l)_l$ au sens du projecteur usité. C'est en cela que se pose un problème de ***complétude*** dans le traitement modal des systèmes *à pertes* (à ε complexe). Le développement théorique qui suit y répond bien.

6.5.2 Cas où ε est complexe : le problème adjoint

Considérons l'opérateur linéaire $\mathcal{L}^+ = \bar{\varepsilon}(x).[\frac{d}{dx}(\frac{1}{\bar{\varepsilon}(x)}\frac{d}{dx}) + k^2] = \overline{\mathcal{L}}$.

Soient u et v 2 fonctions de x, pseudo-périodiques (leurs dérivées le sont également). En effectuant les bonnes intégrations par parties, on établit facilement que [18]

$$\boxed{< \mathcal{L}^+ u | v > = < u | \mathcal{L} v >}$$

Autrement dit, $\mathcal{L}^+ = \overline{\mathcal{L}}$ est l'opérateur **adjoint** de $\mathcal{L}$ (auto-adjoint si $\varepsilon(x)$ est à valeurs réelles).[19]

Comme $\mathcal{L}$, l'opérateur $\mathcal{L}^+$ possède un spectre de valeurs propres $\boxed{(\Lambda_l^2)^+}$, associé à une famille de fonctions propres pseudo-périodiques $\boxed{(X_l^+)_l}$. Cette famille constitue une base *adjointe* à la base des fonctions propres $(X_l)_l$. Etant donné que la famille adjointe correspond à $\bar{\varepsilon}$, cela signifie que les fonctions propres d'une part, et adjointes d'autre part, ont des dépendances temporelles *réciproques* : $e^{-i\omega t}$ pour la première, l'inverse pour la seconde (cette dépendance devient indifférente quand ε est réelle).

On peut maintenant énoncer un certain nombre de propriétés importantes, dont je donne juste quelques éléments de démonstraton en bas de page (se référer aussi à [13]), sachant que chacune d'entre elles est, bien sûr, vérifiée numériquement :

---

[18]

$$< \mathcal{L}^+ u | v > = \frac{1}{d}\int \frac{1}{\varepsilon(x)}\overline{\overline{\mathcal{L}}u} \cdot v = \frac{1}{d}\int (\frac{u'}{\varepsilon(x)})' v + k^2 \overline{u} \cdot v = \underbrace{\frac{1}{d}[\frac{\bar{u}' \cdot v}{\varepsilon(x)}]_0^d}_{=0} - \frac{1}{d}\int \frac{\bar{u}' \cdot v'}{\varepsilon(x)} + \frac{k^2}{d}\int \overline{u} \cdot v$$

[19]Remarque : attention, on n'a pas $< \mathcal{L}u | v > = < u | \mathcal{L}^+ v >$, sauf si $\varepsilon(x)$ est réelle

a) Les valeurs propres $(\Lambda^2)^+$ de l'opérateur adjoint $\mathcal{L}^+$ sont exactement les conjuguées[20] de celles de $\mathcal{L}$:

$$\forall n \in \mathcal{N}, (\Lambda_n^2)^+ = \overline{\Lambda_n^2}$$

La bijection entre les deux ensembles de valeurs propres assure que les bases initiale $(X_l)_l$ et adjointe $(X_l^+)_l$ ont même dénombrement [21].

b) Il en découle immédiatement que la base propre est **orthogonale** à son adjointe[22]

$$\forall (p,l) \in \mathcal{N} \times \mathcal{N}, < X_p^+ | X_l >= 0 \quad si \quad p \neq l$$

Remarque : on pourrait procéder à la "bi-normalisation" des bases $(X_l)_l$ et $(X_l^+)_l$ (telle que $< X_l^+ | X_l >= 1$ puisque les fonctions propres sont définies à une constante complexe multiplicative près). Ce calcul supplémentaire n'est pas exigible et nous garderons les fonctions propres sous leur forme primaire.

c) Toute fonction f(x) continue et dérivable par morceau peut être développée, dans le réseau périodique, en somme uniformément convergente des fonctions propres de l'opérateur, de la manière suivante :

$$\forall x, f(x) = \sum_l \frac{< X_l^+ | f >}{< X_l^+ | X_l >} X_l(x)$$

L'emploi des éléments $(X_l^+)_l$ de la base adjointe permet donc de définir, de manière unique, les coefficiens c_l du développement modal du champ magnétique dans le réseau : $\forall x \in [0,d], H_z(x, y = cte) = \sum_{l=1}^{\infty} c_l \cdot X_l(x)$.

[20] On peut s'en persuader pratiquement d'un point de vue matriciel : si A est une matrice représentant $\mathcal{L}$, et λ une valeur propre associée, l'égalité $\overline{det(A - \lambda I)} = 0 = det(\bar{A} - \bar{\lambda} I) = det({}^t(\bar{A} - \bar{\lambda} I)) = det(A^+ - \bar{\lambda} I)$ prouve l'assertion.

[21] Attention ! Rien ne permet de dire que $\overline{\mathcal{L}^+ X_l^+} = \overline{\mathcal{L}^+} \cdot \overline{X_l^+}$ et d'en conclure, puisque $\mathcal{L}^+ = \overline{\mathcal{L}}$, $X_l^+ = \overline{X_l}$. C'est en général faux, à cause justement de la pseudo-périodicité.

[22] $\forall (p,n) \in \mathcal{N}^{*2}$, $< \mathcal{L}^+ X_p^+ | X_l >=< X_p^+ | \mathcal{L} X_l >$, soit $[\overline{(\Lambda_p^2)^+} - \Lambda_l^2] < X_p^+ | X_l >= 0$, d'où le résultat (dans l'hypothèse où les valeurs propres ne sont pas dégénérées. Si c'est exceptionnellement le cas, les fonctions propres ont des parités différentes, d'où découle l'orthogonalité mutuelle).

6.5.3 Fonctions propres adjointes

L'obtention des fonctions propres adjointes $(X_l^+(x))_l$ ne s'impose que si $\varepsilon(x)$ est complexe (sinon, la base modale est auto-ajointe). On raisonne comme pour $(X_l(x))_l$, mais avec $\bar{\varepsilon}(x)$ (la propriété de pseudo-périodicité est exactement la même). Par conséquent, leurs expressions littérales sont en tout point analogues à celles des fonctions propres $(X_l(x))_l$ et l'on peut sans difficulté vérifier les correspondances suivantes[23]

base initiale $\rightarrow$ base adjointe[24]

$$\begin{gathered}
\Lambda^2 \rightarrow (\Lambda^2)^+ = \overline{\Lambda^2} \\
\alpha \rightarrow \alpha^+ = \overline{\alpha} \\
\beta \rightarrow \beta^+ = \overline{\beta} \\
T_{11}^l \rightarrow (T_{11}^l)^+ = \overline{T_{11}^l} \\
T_{12}^l \rightarrow (T_{12}^l)^+ = -\overline{T_{12}^l}
\end{gathered}$$

$$V_0^l \rightarrow (V_0^l)^+ = -\frac{e^{ikd\sin\theta}-\overline{T_{11}^l}}{\overline{T_{12}^l}} \neq V_0^l$$

Il est donc en général <u>faux</u> d'avoir $X_l^+ = \overline{X_l}$, excepté en incidence <u>normale</u> ou plus généralement quand $kd\sin\theta = 2n\pi$ ([25]). Rien n'indique même qu'il y ait une relation générale et pratique entre une fonction propre et son adjointe[26].

6.6 Equation matricielle modale et résolution

Les bases modales de toutes les régions du système et les projecteurs orthogonaux étant clairement posés, on peut résoudre soigneusement le problème modal. Le développement calculatoire qui suit vaut *quelle que soient* la constante diélectrique du réseau et le nombre de cavités par période (l'information sur la sous-structure est implicitement contenue dans les fonctions $X_l(x)$). Il ne présuppose pas non plus qu'on étudie une géométrie sub-longueur d'onde.

---

[23] *Rappel :* définition convenue de la racine d'un complexe conjugué : $(\bar{z})^{1/2} = \sqrt{|z|}e^{-iarg(z)/2} = \overline{z^{1/2}}$

[24] *Attention :* dans la programmation informatique, quand il s'agit d'écrire les termes "adjoints", il faut veiller à ne pas poser directement $\overline{\alpha_l}$ et $\overline{\beta_l}$ mais conserver les expressions $\alpha_l^+ = \sqrt{\varepsilon_d k^2 - (\Lambda_l^2)^+}$ et $\beta_l^+ = \sqrt{k^2\varepsilon_m - (\Lambda_l^2)^+}$, sinon, on n'obtient pas $\alpha^+ = \alpha$ ni $\beta^+ = \beta$ dans le cas où ε_m deviendrait réelle (donc quand les $\Lambda_l^2 = (\Lambda_l^2)^+ \in \mathcal{R}$). Il est prudent de toujours travailler avec des quantités où les valeurs propres (complexes) apparaissent explicitement.

[25] En revanche, pour un nombre fini de fentes (non-soumises à la condition de pseudo-périodicité), les modes "liés" (de cavité) sont bien décrits par des fonctions propres telles que $X_l^+ = \overline{X_l}$.

[26] A ce sujet, Li Feng [13] prétend qu'en fixant convenablement les constantes de normalisation, on obtient une relation du type $X_l^+(x) = e^{ikd\sin\theta}\overline{X_l(-x)}$, résultat que je ne confirme pas, car si $\varepsilon(x)$ est réelle partout et $\theta = 0$, les fonctions propres sont réelles et on est conduit à $X_l(-x) = \overline{X_l(x)} = X_l(x)$, soit des fonctions strictement paires...

6.6.1 Expressions générales

Considérant une période d de référence, on a, pour tout $x \in [0, d]$:

$$\forall y > 0, \quad H_z^I(x,y) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} [\delta_{n0} e^{-ik\eta_0^I y} + R_n e^{ik\eta_n^I y}] e_n(x)$$

$$\forall y < -h, \quad H_z^{III}(x,y) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} T_n e^{-ikn_{III}(y+h)\eta_n^{III}} \cdot e_n(x)$$

$$\forall y \in [0, -h], \quad H_z^{II}(x,y) = \sum_{l>0} X_l(x).[A_l e^{i\Lambda_l y} + B_l e^{-i\Lambda_l y}]$$

On rapelle que $\gamma_n = \sin\theta + n\frac{2\pi}{d}$, $\eta_n^I = \sqrt{1-\gamma_n^2}$ et $\eta_n^{III} = \sqrt{1-(\frac{\gamma_n}{n_{III}})^2}$ $n_{III} = \sqrt{\varepsilon_{III}}$ est l'indice du milieu de transmission, a priori quelconque.

Pour des raisons pratiques pour la suite, on préfèrera poser :

$$H_z^{II}(x,y) = \sum_{l>0} X_l(x).[A_l \cos(\Lambda_l(y+\frac{h}{2})) + B_l \sin(\Lambda_l(y+h/2))] \tag{6.11}$$

6.6.2 Connexion des champs des 3 régions

Les relations de passage, exposées en page 132, s'écrivent comme simples combinaisons des élements des bases $(e_n)_n$, et $(X_l^+)_l$ (cette dernière étant éventuellement auto-adjointe). En introduisant $\boxed{a_l = A_l \cos(\Lambda_l \frac{h}{2}))}$ et $\boxed{b_l = B_l \sin(\Lambda_l \frac{h}{2}))}$, le raccordement au niveau des 2 interfaces horizontales (I/II et II/III) donne :

$$\text{Champ magnétique } H_z \begin{cases} e_0(x) + \sum_n R_n e_n(x) = \sum_l [a_l + b_l] \cdot X_l(x) \\ \sum_n T_n e_n(x) = \sum_l [a_l - b_l] \cdot X_l(x) \end{cases}$$

$$\text{Champ électrique } E_x \begin{cases} \sum_n i\eta_n^I [R_n - \delta_{n0}] e_n(x) = \sum_l (\frac{\Lambda_l}{k})[-a_l \tan(\frac{h\Lambda_l}{2}) + b_l \cot(\frac{h\Lambda_l}{2})] \cdot \frac{X_l(x)}{\varepsilon(x)} \\ -i \sum_n \frac{\eta_n^{III}}{n_{III}} T_n e_n(x) = \sum_l (\frac{\Lambda_l}{k})[a_l \tan(\frac{h\Lambda_l}{2}) + b_l \cot(\frac{h\Lambda_l}{2})] \cdot \frac{X_l(x)}{\varepsilon(x)} \end{cases}$$

L'avantage d'avoir écrit le champ H_z^{II} sous la forme trigonométrique (6.11), se voit déjà ici puisque nous obtenons des termes en tan et cot, lesquels deviennent des tanh et coth ne divergeant jamais quand Λ_l sera complexe et grand en module (contrairement aux exponentielles $e^{\pm i\Lambda_l h}$ dont les additions/soustractions pourraient entraîner de sérieuses erreurs numériques)[27].

[27] On peut tout à fait rétorquer que $\tan(\Lambda h/2)$ est potentiellement divergente si Λ_l est réelle, mais la valeur propre Λ est indépendante de la profondeur du réseau, ce serait donc une malencontreuse coïncidence. En revanche, pour le cas du métal, il est certain que les modes d'ordre supérieur correpondent à des Λ imaginaires très vite élevés en module, d'où la précaution d'écriture.

6.6.3 Projection des équations et résolution

Etant donné que la base de Rayleigh $(e_n(x))_n$ est *commune* à celle du champ magnétique et du champ électrique dans les régions I et III, il est permis de projeter les équations portant sur E_x, sur cette base. Soit m un entier relatif et $e_m(x)$ un élément de la base orthonormale.

On pose alors

$$\chi_{ml} = \frac{1}{d}\int_0^d \overline{e_m}(x)\frac{X_l(x)}{\varepsilon(x)}dx$$

χ_{ml} représente physiquement le degré de similarité (ou de corrélation) entre les distributions de e_m et X_l. Il vient :

$$i\eta_m^I[R_m - \delta_{m0}] = \sum_l (\frac{\Lambda_l}{k})[-a_l \tan(\frac{h\Lambda_l}{2}) + b_l \cot(\frac{h\Lambda_l}{2})]\chi_{ml} \tag{6.12}$$

$$-\frac{i\eta_m^{III}}{n_{III}}T_m = \sum_l (\frac{\Lambda_l}{k})[a_l \tan(\frac{h\Lambda_l}{2}) + b_l \cot(\frac{h\Lambda_l}{2})]\chi_{ml} \tag{6.13}$$

Quant aux équations portant sur le champ magnétique, elles sont projetées, avec le bon produit interne, sur la base adjointe à celle des fonctions propres du réseau (auto-adjointe si ε est réelle). Soit p un entier > 0 et $X_p^+(x)$ un élément de la base adjointe.

En posant d'une part

$$\Upsilon_{pn} = \frac{1}{d}\int_0^d \frac{1}{\varepsilon(x)}\overline{X_p^+(x)}e_n(x)dx$$

Et d'autre part

$$\Omega_{pl} = \frac{1}{d}\int_0^d \frac{\overline{X_p^+(x)}.X_l(x)}{\varepsilon(x)}dx$$

On obtient :

$$\sum_n [\delta_{n0} + R_n]\Upsilon_{pn} = [a_p + b_p]\Omega_{pp} \tag{6.14}$$

$$\sum_n T_n \Upsilon_{pn} = [a_p - b_p]\Omega_{pp} \tag{6.15}$$

Les coefficients a_l et b_l relatifs aux modes propres sont donc clairement extraits, isolément, par cette procédure. Ω est une matrice diagonale[28] (méthode de calcul en Annexe page 240).

Nous obtenons par ces différentes projections des équations purement modales. On élimine les coeffients inconnus R_n et T_n en injectant les équations 6.12 et 6.13 dans

[28] cela provient de l'orthogonalité entre les bases modale et adjointe. Toutefois, cette matrice ne doit pas être définie *a priori* comme diagonale, dans le programme informatique. Sa diagonalité doit servir de *test* de vérification.

6.14 et 6.15. Il est alors commode de formuler les 2 équations résultantes, portant uniquement sur les coefficients a_l et b_l, sous la forme d'un système matriciel.

Introduisons seulement les matrices diagonales Δ, Π, K^I et K^{III} telles que :

$$\Delta_{pl} = \frac{\Lambda_l}{k}\tan(\frac{h\Lambda_l}{2})\delta_{pl} \quad \Pi_{pl} = \frac{\Lambda_l}{k}\cot(\frac{h\Lambda_l}{2})\delta_{pl}$$

$$K^I_{mn} = 1/(i\eta^I_n)\delta_{mn} \quad K^{III}_{mn} = n_{III}/(i\eta^{III}_n)\delta_{mn}$$

Alors

$$\begin{bmatrix} \Omega + \Upsilon K^I \chi\Delta & \Omega - \Upsilon K^I \chi\Pi \\ \Omega + \Upsilon K^{III}\chi\Delta & -\Omega + \Upsilon K^{III}\chi\Pi \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \vec{a} \\ \vec{b} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 2\Upsilon\vec{V} \\ \vec{0} \end{bmatrix}$$

$\vec{a}$ et $\vec{b}$ représentent les vecteurs colonnes contenant respectivement les coefficients a_l et b_l qu'on cherche à déterminer.

$\vec{V}$ est un vecteur d'excitation dont les termes, dans la base de Rayleigh, s'expriment par $V_n = \delta_{n0}$. Le seul terme non-nul correspond ainsi à la présence de l'onde incidente, qui varie comme $e_0(x)$. La matrice Υ venant pondérer le vecteur excitation reflète le "recouvrement" des bases interne et externe au réseau (et donc le transfert d'énergie entre les différentes régions).

Les éléments χ et Υ, pour les réseaux à 1 et 2 fentes, sont indiqués en Annexe, page 239. On notera que dans le cas où ε est réelle, on a $\Upsilon =^t \bar{\chi}$

L'équation matricielle modale finale peut s'écrire simplement sous la forme :

$$\mathcal{M}\begin{bmatrix} \vec{a} \\ \vec{b} \end{bmatrix} = 2\Upsilon\begin{bmatrix} \vec{V} \\ \vec{0} \end{bmatrix}$$

Bien sûr, les matrices nécessitent d'être tronquées. On notera $\boxed{L}$ le nombre de modes propres de réseau théoriquement pris en compte (suite ordonnée $(X_l)_{l\in[0,L-1]}$), et $\boxed{2N+1}$ le nombre maximum de modes de Rayleigh (base restreinte $(e_n)_{n\in[-N,N]}$).

$\mathcal{M}$ est une matrice *carrée*, de rang $2L\times 2L$ (concaténation de 4 sous-matrices carrées de rang L). Le fait d'augmenter le nombre de modes de Rayleigh ou de modes propres internes au réseau ne semble pas poser de problème d'instabilité. Du reste divisera-t-on les 2 blocs inférieurs $\mathcal{M}$ par n_{III} pour parer au cas où ε_{III} serait très grande (voire infinie). Une fois le calcul des éléments des matrices χ, Ω et Υ effectués, l'inversion de $\mathcal{M}$ permet de trouver directement les coefficients a_l et b_l, puis les coefficients R_n et T_n : notre problème est donc **résolu**.

6.6.4 Discussion sur la méthode de projection

Suratteau *et. al.* [11] ont qualifié de **méthode "homogène"** la méthode consistant à projeter toutes les équations sur une seule et même base, par opposition à la **méthode "hybride"**, celle que j'ai employée ci-dessus. La méthode homogène conduit à

des matrices rectangulaires (la base de Rayleigh et la base propre n'ont pas le même dénombrement) et la solution du problème ne peut être déterminée qu'en prenant systématiquement $2N+1 = L$ (puisqu'il faut procéder à une inversion de matrice carrée). Cette méthode a notamment été appliquée par Sheng *et. al.* [3] mais ils ne donnent aucune information sur les ordres de troncature [29]. Suratteau *et. al.* ont démontré, dans le cas des réseaux diélectriques, que la méthode "hybride" satifaisait automatiquement le critère de conservation de l'énergie ainsi que le théorème de réciprocité, quelque soit la troncature des matrices modales. Ce n'est en revanche pas le cas pour la méthode homogène, et la conservation de l'énergie sert alors de preuve *a posteriori* que l'ordre de troncature est raisonnable. Mais à partir du moment où l'on traite avec des matériaux à pertes, le critère de conservation de l'énergie n'est de toute façon plus exploitable. Cet ensemble de remarques justifie donc mon choix de projection et ce n'est pas chose évidente : la méthode homogène a l'avantage de ne pas faire appel à une base propre adjointe (en projetant tout sur la base de Rayleigh), et on aurait pu facilement opter pour elle si on voulait faire abstraction des considérations ci-dessus.

L'autre point important, qui nous est favorable, c'est que nous avons beaucoup plus d'informations sur la base de Rayleigh que sur la base propre puisque tous les éléments e_n sont connus. Il est donc aisé de prendre un rang N très élevé (jusqu'à 1000 ordres de diffraction dans le cas des simulations présentées ultérieurement). En revanche, la connaissance des éléments de la base propre requiert de gros efforts. Il est donc justifié d'avoir injecté les équations 6.12 et 6.13 dans 6.14 et 6.14, c'est-à-dire de résoudre le problème en ses inconnues a_l et b_l plutôt qu'en R_n et T_n. On fait ainsi l'économie de manipuler une matrice $\mathcal{M}$ de rang $2N+1$ qui aurait nécessité de connaître, pour être consistante, un grand nombre de fonctions propres X_l. Contrairement à la méthode homogène, on peut se fixer définitivement un grand nombre N, de sorte que *la convergence soit uniquement paramétrée par le (faible) nombre L de modes propres pris en compte.*

On a dit plus haut que le critère de conservation de l'énergie n'était pas pertinent pour savoir si la convergence des champs était atteinte (que ce soit pour des matériaux avec ou sans perte). Il s'agit donc d'analyser, en augmentant L, la *stabilisation* effective des spectres de réflectivité (et/ou de transmission) et des champs électromagnétiques en des endroits du système où leur convergence serait la plus délicate. En dernier lieu, la *cartographie spatiale* à l'échelle du réseau nous convaincra de la bonne continuité de tel ou tel champ tangentiel aux interfaces matérielles.

[29] la projection sur 2 bases différentes permet au contraire une "semi-inversion" du système d'équations modales, d'où une relation matricielle finale parfaitement déterminée.

Bibliographie

[1] R.Petit, *Electromagnetic Theory of Gratings* (Ed. R.Petit, Springer, Berlin, 1980).

[2] D.Maystre, *Rigorous Vector Theories of Diffraction Gratings* (E.Wolf, Progress In Optics XXI, 1984).

[3] P.Sheng, R.S.Stepleman, P.N.Sanda, *Phys.Rev.B* **26**, 2907 (1982). "Exact eigenfunctions for square-wave gratings : Application to diffraction and surface-plasmon calculations"

[4] L.C.Botten, M.S.Craig, R.C.McPhedran, J.L.Adams, et J.R.Andrewartha, *Optica Acta* (devenu *Journal of Modern Optics*), **28**, 413 (1981).

[5] L.C.Botten, M.S.Craig, R.C.McPhedran, J.L.Adams, et J.R.Andrewartha, *Optica Acta*, **28**, 1087 (1981). "The finitely conducting lamellar diffraction grating"

[6] L.C.Botten, M.S.Craig, R.C.McPhedran, J.L.Adams, et J.R.Andrewartha, *Optica Acta*, **28**, 1103 (1981) [article sur la résolution numérique de l'équation aux valeurs propres dans le cas des métaux hautement conducteurs]

[7] J.R.Andrewartha, G.H.Derrick et R.C.McPhedran, *Optica Acta*, **28**, 1177-1193 (1981). "A modal theory solution to diffraction from a grating with semi-circular grooves"

[8] J.R.Andrewartha, G.H.Derrick et R.C.McPhedran, *Optica Acta*, **28**, 1501-1516 (1981). "A general modal theory for reflection gratings"

[9] L.C.Botten, M.S.Craig et R.C.McPhedran, *Computer Phys. Commun.*, **29**, 245 (1983).

[10] L.C.Botten et R.C.McPhedran, *Optica acta*, **32**, 1479-1488, (1985). "Completeness and modal expansion methods in diffraction theory".

[11] J.Y.Suratteau, M.Cadilhac et R.Petit, *J.Optics* (Paris), **14**, 273 (1983). "Sur la détermination numérique des efficacités de certains réseaux diélectriques profonds"

[12] G.Tayeb et R.Petit, *Optica Acta*, **31**, 1361 (1984). "On the numerical study of deep conducting lamellar diffraction gratings"

[13] Lifeng Li, *Journal of Modern Optics*, **40**, 553 (1993). "A modal analysis of lamellar diffraction gratings in conical mountings"

[14] M.P. Davidson, *Journal of Modern Optics*, **50**, 1817 (2003). "A modal model for diffraction gratings" (voir aussi les références internes à l'article)

[15] S.Astilean, Ph.Lalanne, M.Palamaru, *Optics Communications*, **175**, 265-273 (2000). "Light transmission through metallic channels much smaller than the wavelength"

[16] F.I. Baida et D. Van Labeke, *Phys.Rev.B*, **67**, 155314 (2003). "Three-dimensional structures for enhanced transmission through a metallic film : Annular aperture arrays"

[17] Max Born et Emil Wolf, *Principles of Optics* (Pergamon Press, 6eme edn, 1991).

Chapitre 7

Exploitation Numérique de la Méthode Modale Exacte

Ce chapitre d'application fait suite au chapitre formel précedent. Il s'agit d'exposer, de manière détaillée, l'exploitation numérique du traitement modal exact d'un réseau (lamellaire) métallique. Etant donné le compromis permanent qui existe entre une économie de calculs (ou de temps) et une qualité optimale de simulation, la difficulté d'exploiter la MME avec une relative souplesse réside dans le fait de travailler avec un nombre forcément *restreint, mais pertinent* de valeurs propres. Pour l'illustration, nous ne considèrerons ici que des réseaux en or, à 1 ou bien 2 cavités par période, exclusivement en polarisation TM, et dans une gamme spectrale où la constante diélectrique du métal $\Re(\varepsilon_m) << 0$, en l'occurrence dans l'infra-rouge (dans la littérature, les applications numériques n'ont souvent concerné que des métaux de constantes diélectriques faibles en module (domaine visible), pour lesquels les calculs numériques sont moins ardus, mais aucun spectre de réponse dans l'infra-rouge (avec $|\varepsilon| >> 0$) n'a été publié, à ma connaissance). Le Chapitre 8 constituera une application intéressante de la méthode, dans le domaine visible cette fois, afin d'expliquer les phénomènes d'absorption optique anormale dans des structures métalliques très fortement sub-longueur d'onde.

7.1 Résolution numérique de l'équation aux valeurs propres

Tout d'abord, l'exploitation de la méthode modale exacte butte sur un écueil de taille : la résolution de l'Equation aux Valeurs Propres (EVP). Cette équation est en effet fortement non-linéaire, et à racines complexes dans le cas d'une permittivité complexe (matériau à pertes). Ce problème est bien connu et a pu décourager certaines équipes à employer la modalisation par la méthode modale. Des techniques mathématiques ont été proposées par Botten *et al*[1], Tayeb et Petit[2]. Je n'ai pas repris leur méthode de résolution, mais ai mis au point une procédure en 2 temps, manifestement fiable, qui recourt à une programmation simple, puis aux performances de MAPLE.

[1] L.C.Botten *et al*, *Optica Acta*, **28**, 1103 (1981).
[2] G.Tayeb et R.Petit, *Optica Acta*, **31**, 1361 (1984).

J'en donne d'abord le principe (relativement évident), puis détaille la mise en pratique sur le plan informatique.

Comme on cherche à simuler des spectres de réponse sur toute une plage de longueur d'onde, il faut résoudre numériquement l'EVP à *chaque* fréquence d'étude. Cette étape est de loin la plus longue et la plus exigeante du traitement modal, d'autant qu'elle n'est pas sans surprise (problème des solutions cachées)...Evidemment, toutes les racines Λ^2 évoluent plus ou moins sensiblement avec la fréquence : chacune décrit en fait une **courbe de dispersion** spécifique à un mode propre. On dresse ainsi ce que j'appellerai la Carte Modale du réseau. Notons que ces calculs sont indépendants de la profondeur h de la structure périodique.

N.B. : les programmes informatiques ont été testés avec succès, en comparant, dans l'exemple d'un réseau lamellaire de cavités sub-longueur d'onde, les résultats obtenus *via* la méthode modale exacte, avec des calculs effectués par d'*autres méthodes* numériques et publiés dans la littérature (méthode modale de Fourier ou $RCWA$, et méthode des élements finis ou $FDTD$). L'étude comparative et les références en question sont données en Annexe D.5.

7.1.1 Principe

Considèrons un paramètre sans dimension $t \in [0, 1]$ et une permittivité relative du métal vérifiant $\varepsilon_m(t) = \Re(\varepsilon_m) + t \cdot i\Im(\varepsilon_m)$. Les termes $\Re(\varepsilon_m)$ et $\Im(\varepsilon_m)$ sont réels et fixés. Ce que nous pressentons raisonnablement tient en ceci :

En faisant varier t de 0 à 1, les racines Λ^2 de l'équation transcendante vont développer, sans discontinuité, une partie imaginaire, selon une loi du type

$$\Lambda^2 = \Re(\Lambda^2)(t) + i\Im(\Lambda^2)(t), \quad avec \quad \Im(\Lambda^2)(0) = 0$$

Malgré la forte non-linéarité de l'équation aux valeurs propres, on table *a priori* sur l'idée qu'on ne rencontre pas de saut dans les valeurs prises par les différentes racines, quand on fait évoluer progressivement la constante diélectrique de sa valeur réelle à son complément complexe.

L'équation aux valeurs propres (voir pages 135 et 136) doit être écrite sous la forme $\boxed{F(\Lambda^2) - \cos(kd\sin\theta) = 0}$. On cherche donc les racines Λ^2 de la fonction $F(\Lambda^2) - \cos(kd\sin\theta)$. Quand $\varepsilon_m = \varepsilon_m(t = 0)$, $F(\Lambda^2) - \cos(kd\sin\theta)$ est à valeurs réelles et la recherche des valeurs propres (purement réelles) est aisée, *via* une méthode de résolution graphique (voir Figure 7.1). On peut ensuite suivre le déplacement paramétré de chaque racine dans le plan complexe quand ε_m développe sa partie imaginaire, certaines racines évoluant alors plus sensiblement que d'autres (c'est ce qu'on voit numériquement). La plupart du temps, on pourra passer directement de $t = 0$ à $t = 1$. Il faudra néanmoins se méfier de l'existence de racines complexes (Figure 7.1), indétectables graphiquement à $t = 0$, mais physiquement pertinentes à $t = 1$: c'est le délicat problème des racines cachées (voir section correspondante plus loin).

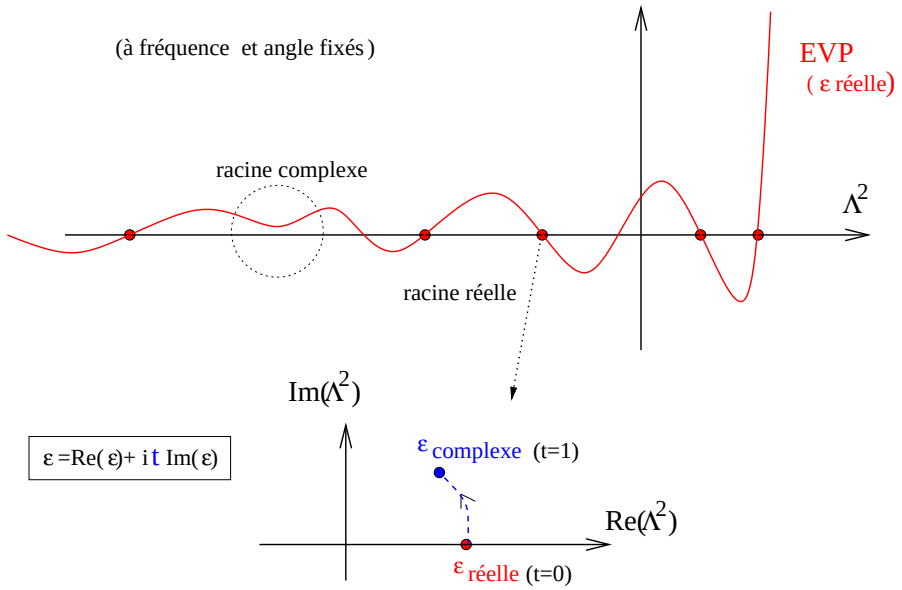


FIG. 7.1 – Schéma type de l'allure du membre de l'EVP, à paramètres opto-géométriques réels (fixés). Les racines (réelles) sont obtenues par une méthode graphique. En développant "adiabatiquement" la partie imaginaire de ε, on obtient les racines complexes finales. Les zones éventuelles où la courbe de l'EVP passe très près de l'axe des abscisses, sans le couper, contiennent des racines complexes indétectables graphiquement.

7.1.2 Descriptif de la procédure informatique

En pratique, il est hautement préférable de résoudre l'EVP, non pas directement en Λ^2, mais en la variable normalisée $\boxed{X = (\Lambda/k)^2}$. Les racines X sont alors sans dimension et on évite d'avoir à chercher des racines sur une plage de valeurs démesurée (k est très grand). La procédure de résolution de l'EVP se déroule en 2 temps :

1) Première étape : on cherche d'abord l'ensemble des racines pour des constantes diélectriques sans partie imaginaire. La courbe représentative de $F(\Lambda^2) - \cos(kd\sin\theta)$ est donc réelle. La détection par changement de signe (programme FORTRAN,C ou autre) permet de trouver le nombre désiré de valeurs propres normalisées. Les solutions $(\Lambda/k)^2)$ ainsi obtenues sont donc purement *réelles*. C'est ce que j'appelle les racines-source (correspondant aux $\Re(\Lambda^2)(t = 0)$ décrits en section précédente). Si on étudie des matériaux sans absorption, la résolution de l'EVP s'arrête carrément à cette étape.

2) Seconde étape : on prend maintenant en compte la partie imaginaire de(s) constante(s) diélectrique(s) du réseau et on cherche les solutions complexes *autour* de chaque solution réelle. Pour ce faire, j'ai directement exploité, après l'avoir testée, une procédure efficace que propose le logiciel MAPLE (version 7, en l'ocurrence) : la fonction FSOLVE[3] est une variation de la méthode de Newton, permettant de résoudre numériquement, et

[3]Une fois tous les paramètres opto-géométriques déterminés, la commande se formule comme suit : [> **fsolve**(EVP(X),X=X_0,complex) ; où X_0 est une des racines-source. EVP(X) est définie comme une fonction, à valeurs dans C, de la variable complexe $X = (\Lambda/k)^2$, et qui s'annule en ses racines.

presque instantanément, des équations à racines *a priori* complexes, pourvu que l'on précise le bassin complexe dans lequel on cherche la solution. FSOLVE doit donc être appliquée correctement pour chaque valeur propre réelle précédemment trouvée.

• La pré-détection des racines, en prenant d'abord $\varepsilon(x)$ sans partie imaginaire, doit être effectuée avec soin. La méthode graphique consiste à trouver les solutions lorsque la courbe représentative de $F(\Lambda^2) - \cos(kd\sin(\theta)$ coupe l'axe des abscisses et change de signe), *en balayant l'axe des réels depuis les valeurs positives (de quelques unités en général) vers les valeurs négatives, avec un certain pas de résolution.* Cette méthode souffre cependant d'une marche à l'aveugle. Il ne faut absolument pas rater la racine la plus positive (le mode fondamental), et le pas du balayage doit être suffisamment petit pour déceler tous les changements de signe éventuels. Cependant, plus les géométries sont sub-longueur d'onde, plus les racines sont espacées les unes des autres. Dans le cas des réseaux métalliques à 2 fentes par période, notamment pour une constante diélectrique du métal très élevée en module, il n'est pas rare de devoir résoudre en $X = (\Lambda/k)^2$ à 10^{-6} près, du fait de nombreuses paires de racines (d'où un temps de calcul assez long pour la première étape). Lorsqu'à une fréquence donnée, on a trouvé le nombre de valeurs propres qui nous convient, il est bon de visualiser (parfois) *l'allure graphique* de la courbe représentative de l'EVP pour s'assurer que certaines racines ne nous ont pas échappé, ou que l'une d'elle n'est pas dégénérée (certains zooms graphiques sont nécessaires).

• De manière générale, lorsqu'on rajoute aux constantes diélectriques leurs parties imaginaires, la partie réelle des racines obtenues ne bougent pas beaucoup ; en revanche, les parties imaginaires de telle et telle racine peuvent être très contrastées (on en verra plus loin des exemples). Plus la partie imaginaire de $\varepsilon(x)$ est petite, moins il y a de problème pour l'obtention des racines complexes. Si FSOLVE ne converge pas directement sur une solution complexe recherchée, il est nécessaire de faire une résolution complexe *pas à pas*, en développant très progressivement la partie imaginaire des constantes diélectriques pour suivre le déplacement "adiabatique" de la racine jusqu'à son point final. Les solutions telles que $\Re((\Lambda/k)^2)$ est *juste inférieur* à ε_m nécessitent souvent ce recours, à cause d'une convergence plus difficile dans cette zone. Si certaines racines-source sont trop proches les unes des autres (ce qui est surtout dans le cas des réseaux à 2 fentes par période), on doit également effectuer une résolution complexe progressive. L'avantage de l'incidence normale pour un réseau simple, c'est qu'il est possible de départager les racines d'une paire reserrée par la sission de l'EVP en 2 sous-équations plus simples (*cf* page 138), à condition toutefois que chaque racine de la paire soit respectivement solution d'une des équations secondaires (ce qui n'est pas forcément le cas).

• Pour finir, insistons sur le fait que la racine du mode propre fondamental (ou de la paire fondamentale dans le cas du réseau à 2 fentes par période) doit être la plus précise possible, car son impact est considérable dans la réponse finale du système. Dans les travaux présentés ici, toutes les valeurs propres ont été calculées avec 8 chiffres significatifs (incertitude relative de l'ordre de 10^{-8}).

7.1.3 Courbes de dispersion des modes propres (carte modale)

Les valeurs propres correspondent à des points de fonctionnement du système. Les lieux décrits par chacune d'elles, dans l'espace (k_y, ω) (on rappelle que $\Lambda = k_y$), constituent les *courbes de dispersion des différents modes propres*. Ces courbes sont *continues*, par continuité de $\varepsilon(\omega)$. *Tous* les points d'une même courbe doivent décrire *une* seule fonction propre, de nature déterminée.

Pour les réseaux métalliques à pertes, le rang des modes propres, à fréquence donnée, sera donné par la relation d'ordre $-\infty < \Re(\Lambda_j^2) < ... < \Re(\Lambda_1^2) < \Re(\Lambda_0^2)$. En réalité, tous les modes n'évoluent pas de la même manière, les courbes de dispersion peuvant alors se chevaucher, voire se croiser, si bien que le rang *mathématique* d'une racine ne correspond *pas* toujours au même mode *physique*. A une certaine fréquence, la $i$ème racine peut renvoyer à un mode de cavité, et, à une autre fréquence, renvoyer à une mode type plasmon de surface. C'est pourquoi, en toute rigueur, le numéro de la racine trouvée n'a aucun sens, alors que le numéro de la courbe de dispersion en a.

Si je fais cette remarque, c'est à cause de la nécessaire *troncature des matrices* de projections dans le cacul final. Il ne faut surtout pas raisonner "naïvement" en nombre de valeurs propres retenues, mais plus sûrement en modes physiques retenus. En effet, certains modes de bas rang peuvent n'avoir *aucun poids* dans la réponse optique du système (et on le comprend par l'analyse de leurs fonctions propres), alors que d'autres, situés à des rangs *plus élevés*, en ont.

Dans le cas des réseaux métalliques, on repère 3 zones simples de l'espace $((\Lambda/k)^2, \omega)$ où les courbes de dispersion peuvent s'inscrire. La Figure 7.2 donne l'illustration schématique des trois zones, notées a), b) c).

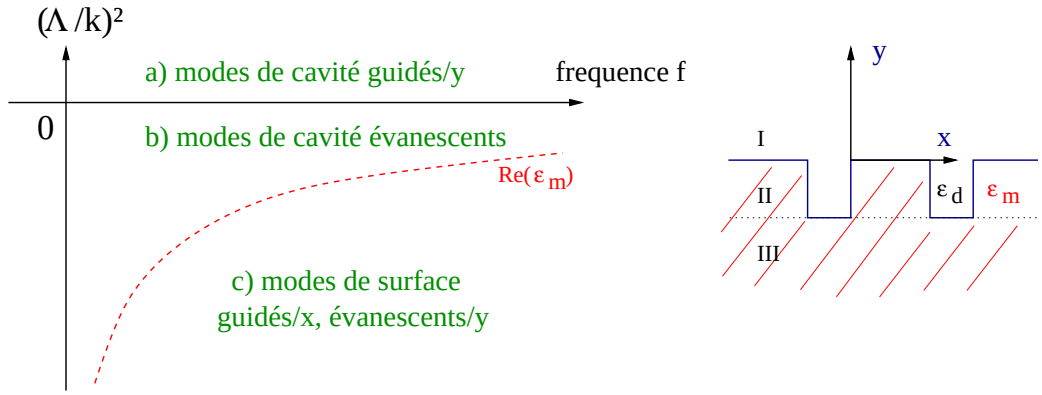


FIG. 7.2 – Schéma des 3 zones dans lesquelles s'inscrivent les courbes de dispersion des modes propres du réseau.

a) La cavité fonctionne comme un guide d'onde suivant y pour tous les modes appartenant à la zone $(\Lambda/k)^2 > 0$. Le mode fondamental appartient toujours à cette zone. Sa courbe de valeurs propres doit être calculée la plus précisément possible.

b) La zone "intermédiaire" correspond à des modes de cavité évanescents suivant y, qui n'ont en général pas de poids dans la réponse optique du sytème. Dans le cas des géométries très sub-longueur d'onde, cette zone est même complètement désertée et la zone a) n'est occupée que par le fondamental.

c) Enfin, la zone "inférieure", sous la courbe frontière $\boxed{(\Lambda/k)^2 = \Re(\varepsilon_m)}$, correspond à l'ensemble (discret et infini) des modes surfaciques, dont on verra plus loin qu'ils correspondent soit à des plasmons de surface horizontaux, soit à des modes de cavité d'ordre supérieur. *Les modes dont les valeurs propres sont situées juste sous la courbe frontière et qui décrivent les premiers plasmons horizontaux auront un poids particulièrement important* (la convergence de la fonction numérique FSOLVE est également plus difficile dans cette zone).

Il n'est bien sûr pas interdit qu'une courbe de dispersion franchisse une des délimitations des 3 zones en question.

Ces propos sont illustrés en Figure 7.3, dans l'exemple d'un réseau simple en Or, dans l'infra-rouge. La Figure montre les courbes de dispersion des 12 premiers modes propres du réseau. En guise de première remarque, on constate que les valeurs propres décrivent toutes des courbes globalement similaires, dont la tendance suit la courbe frontière $(\Lambda/k)^2 = \Re(\varepsilon_m)$; hormis la valeur fondamentale, qui ne bouge quasiment pas ici (≈ 1.12). Ces courbes se ressèrent donc en bloc en allant vers les grands nombres d'onde. La zone c) inférieure connaît notamment une densité de racines plus grande, du fait d'un régime rapidement oscillatoire de l'EVP quand $\Lambda << 0$.

La Figure 7.4 donne deux zooms différents de la carte modale représentée dans la Figure précédente. Le lecteur découvre que les courbes de dispersion peuvent *se croiser de multiples fois.* Aux basses fréquences, par exemple, on voit que les 6ème et 7ème valeurs propres se baladent de part et d'aute de la courbe frontière $(\Lambda/k)^2 = \Re(\varepsilon_m)$. C'est ce genre de comportement qui rend la tâche de la résolution de l'EVP particulièrement délicate, notamment quand 2 racines deviennent quasiment dégénérées alors qu'elles sont associées à des fonctions propres de nature différente. Dans *ces* zones de croisement ou de chevauchement, l'EVP peut cacher des racines complexes, indétectables graphiquement quand on travaille à ε_m réelle (la courbe représentative de l'EVP frôle l'axe des abscisses sans le couper, comme une parabole ayant 2 racines complexes). Ce problème est abordé en détail dans la section suivante.

Dans le cas encore plus compliqué des réseaux métalliques à 2 fentes par période, nous obtiendrons un ensemble de paires de courbes de dispersion resserrées. L'explication est détaillée en page 174. Ces paires de courbes décriront en fait les modes de cavité du réseau. D'autres courbes, isolées cette fois, décriront les plasmons de surface horizontaux du réseau. Dans ce type de structure, le problème des valeurs propres cachées peut devenir plus sérieux que prévu.

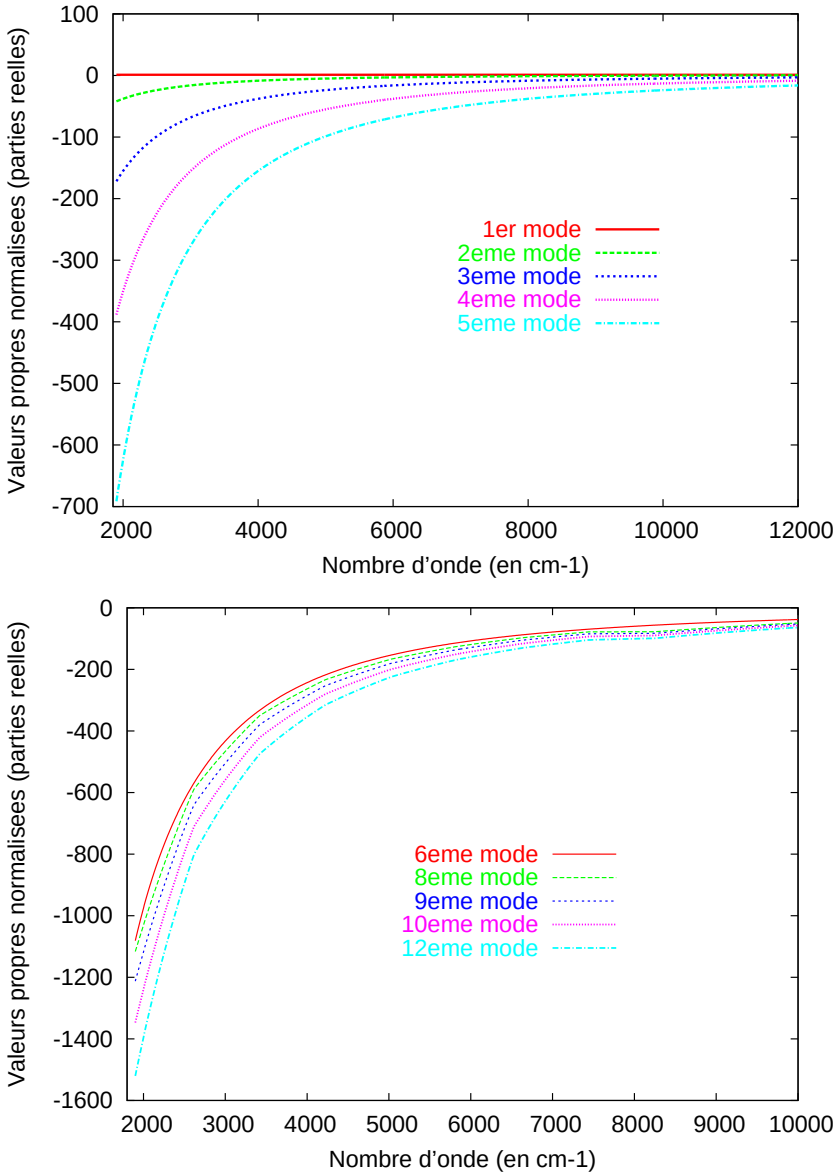


FIG. 7.3 – Carte modale du réseau simple en Or paramétré par $d = 1\mu$m et $w = 400$nm. Les valeurs propres sont en ordonnée et normalisées ($(\Lambda/k)^2$). La permittivité ε_{or} est prise complexe mais seules les parties réelles des racines sont représentées. *En haut* : lieux décrits par les 5 premières valeurs propres (zones a) et b) de la Figure 7.2). *En bas* : lieux décrits par les 6 à 12èmes valeurs propres (zones c de la Figure 7.2).

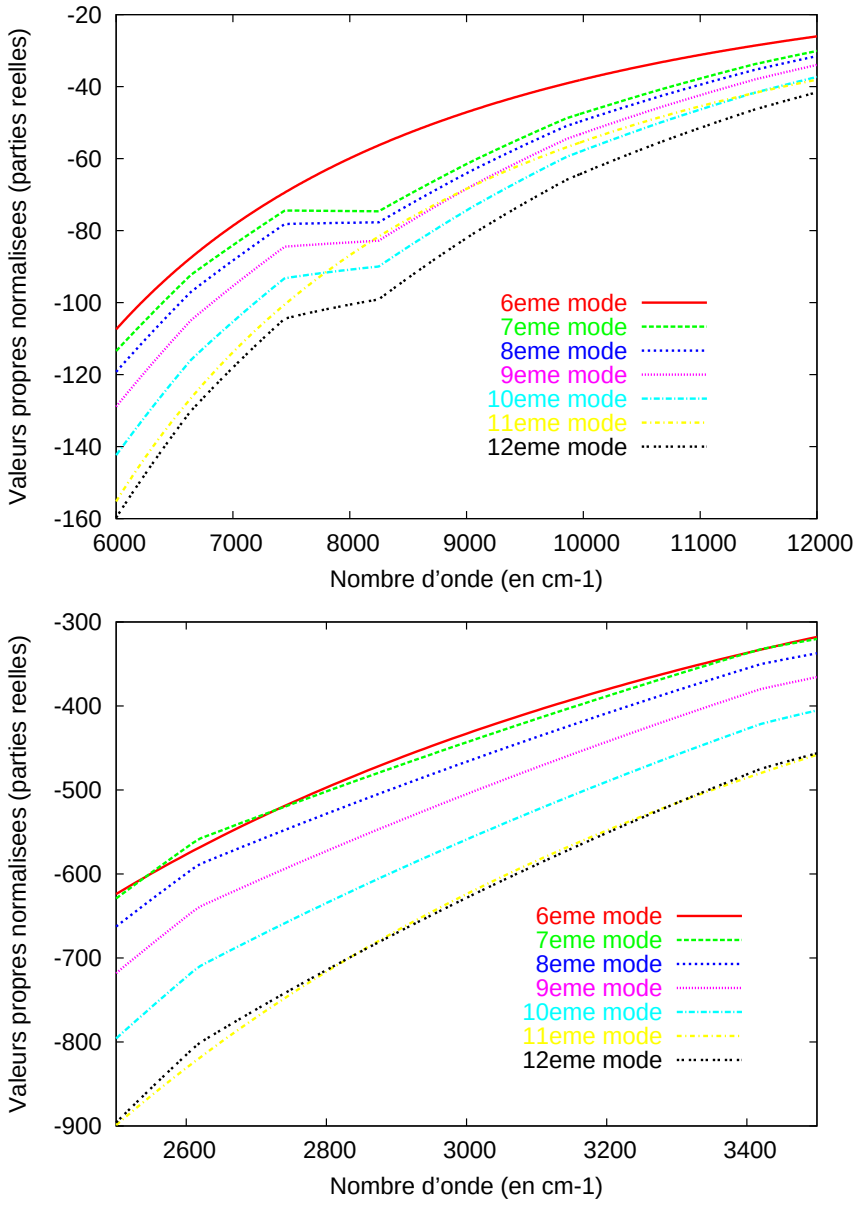


FIG. 7.4 – (couleurs) Zooms de la carte modale de la Figure 7.3. Seules les 6ème à 12ème valeurs propres $(\Lambda/k)^2$ sont considérées. *En haut* : dans le proche Infra-rouge. *En bas* : dans l'IR lointain. Le coude observé sur certaines courbes de dispersion est directement dû au coude de la fonction $\varepsilon_{or}(\omega)$ (voir *Handbook*). Il se trouve que seules les courbes décrivant des plasmons de surface horizontaux sont affectées par ce coude. On verra que les 6ème et 11ème mode sont typiquement des modes de cavité.

Pour savoir combien de valeurs propres il faut calculer au strict *minimum* afin d'obtenir une réponse optique *significative*, il faut connaître le rang s de la racine donnant *au moins le premier mode surfacique* du réseau métallique. Cette racine s'obtient dans la zone où β passe d'imaginaire pur à réel, c'est-à-dire quand $\beta \approx 0$. On trouve que pour un bon métal $\boxed{s \sim \frac{2w}{\lambda}\sqrt{|\varepsilon_m|}}$ [4] (il faut donc prendre l'entier supérieur).

7.1.4 Le problème des racines "cachées"

Comme déjà mentionné dans les sections précédentes, il arrive qu'à $\varepsilon(x)$ réelle, la courbe représentative et oscillante de l'EVP décrive des creux frôlant l'axe des abscisses, sans toutefois le couper. A certaines fréquences, cependant, la courbe peut avoir varié assez pour couper l'axe et donner automatiquement une paire de racines réelles. Ces doublets peuvent apparaître sporadiquement et semer dans les tableaux de racines calculées, un désordre déroutant. La Figure 7.5 montre un exemple significatif, dans le cas d'un réseau simple, dont on cherche à dresser la carte modale avec 10 modes propres.

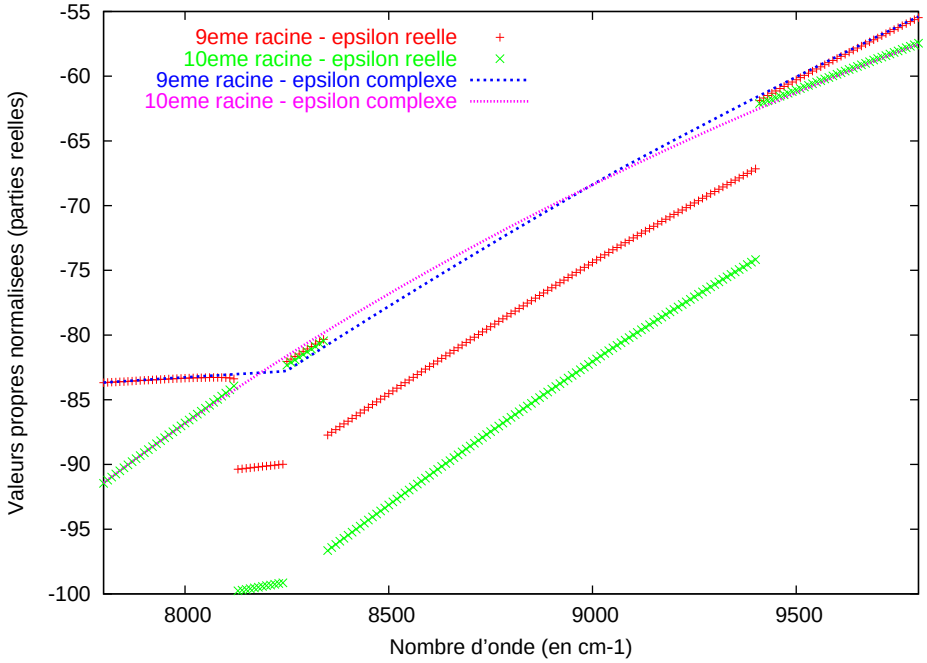


FIG. 7.5 – Lieux décrits par les 9ème et 10 ème racines normalisées $(\Lambda/k)^2$ de l'EVP, dans le cas du réseau simple en Or paramétré par $d = 1\mu m$ et $w = 400nm$ (comme en section précédente), en prenant en compte, ou non, la partie imaginaire de ε_m. Explication dans le texte.

Les spectres décrits par les 9èmes et 10èmes racines, obtenus pour $\varepsilon_m \in R$, présentent des discontinuités du fait d'une fusion-annihilation des 2 courbes (vers $8200cm^{-1}$

[4] En faisant l'approximation $\Lambda_p/k \approx \sqrt{\varepsilon_d - (\frac{p\lambda}{2w})^2}$, ce qui est vrai pour une cavité isolée dans le cas d'un métal parfait, on obtient $\varepsilon_m = \varepsilon_d - (\frac{s\lambda}{2w})^2$. Comme $|\varepsilon_m/\varepsilon_d| >> 1$, le résultat approximatif en découle.

et $9400cm^{-1}$) ou de l'émergence d'une "boucle furtive" (à $8300cm^{-1}$). L'explication est à mettre en relation avec l'allure graphique de l'EVP. Vers $8200cm^{-1}$, dans la zone où $(\Lambda/k)^2 \approx -85$, un creux convexe de la courbe représentative décroche complètement de l'axe réel : deux racines "sautent" conjointement ; par conséquent, la méthode graphique, dont on exige qu'elle donne jusqu'à 10 racines, va aller chercher les deux solutions suivantes détectables, c'est-à-dire, ici, les valeurs des 11èmes et 12èmes modes propres qui se trouvent plus bas (d'où les décrochés, en Figure 7.5).

Pourtant, les 9èmes et 10èmes racines existent toujours mais ont développé une légère partie imaginaire, ce qui les rend fatalement absentes sur les zones spectrales en question. A partir du moment où ε_m est considérée complexe, ces 2 racines (complexes) constituent d'*authentiques solutions*. Il faudra donc compléter les zones manquantes.

Etant donné le procédé décrit en section 7.1.1 (page 154), nous n'avons pas, dans ces zones lacunaires, les racines-source réelles requises autour desquelles chercher les racines complexes finales (*via* FSOLVE). L'on peut dire que les 9èmes et 10èmes racines sont "cachées". Il n'y a alors pas d'autre moyen que d'intuiter le bassin où se trouvent les valeurs cachées et de résoudre directement avec FSOLVE, ce qui demande une assistance manuelle, longue et fastidieuse de la part du chercheur. La Figure 7.5 montre alors les courbes complètes, calculées pour ε_m complexe, et révèle l'existence, effectivement, de ces racines sur *toute* la plage de fréquence étudiée. Aucun décroché n'apparaît. Il se trouve d'ailleurs qu'aux endroits où les 2 courbes de valeurs fusionnaient (ou émergent) pour ε_m réelle, ces courbes sont clairement découplées en passant à ε complexe, et suivent une route continue, distincte.

Ce problème de détection n'est pas lié à une mauvaise précision numérique au cours de la première étape, ni un événement exceptionnel. Les exemples supplémentaires de la Figure 7.6 évoquent des situations plus critiques encore[5].

La résolution de l'équation aux valeurs propres nécessite donc une vigilance soutenue pour déceler et dénouer le genre de problème illustré ici. En tout cas, c'est *toujours dans le domaine* $(\Lambda/k)^2 < \Re(\varepsilon_m)$ que la résolution est la plus délicate[6], mais cela dépend beaucoup des systèmes étudiés. Les réseaux simples, fortement sub-longueur d'onde, notamment en argent, ont l'avantage de ne pas présenter de difficulté.

[5]Le pire des cas, on l'imagine, serait d'avoir une courbe représentative de l'EVP présentant, à côté de franches intersections avec l'axe des abcsisses, un certain nombre d'oscillations passant près de l'axe sans le couper, et ce, sur toute la plage de fréquence qui nous intéresse. C'est pourquoi la visualisation graphique de l'EVP s'impose afin de repérer les racines-source cachées. Mais si ces dernières ont l'inconvénient d'avoir, d'entrée de jeu, une forte partie imaginaire, peut-on encore penser qu'elles doivent être prises en compte ? Il faudrait alors calculer la réponse du réseau avec et sans ces modes pour juger de leur pertinence physique.

[6]Il peut arriver que ces problèmes n'interviennent que vers les valeurs propres de rang élevé, alors, si l'on peut s'en passer pour calculer la réponse du système, on s'en tiendra sagement là.

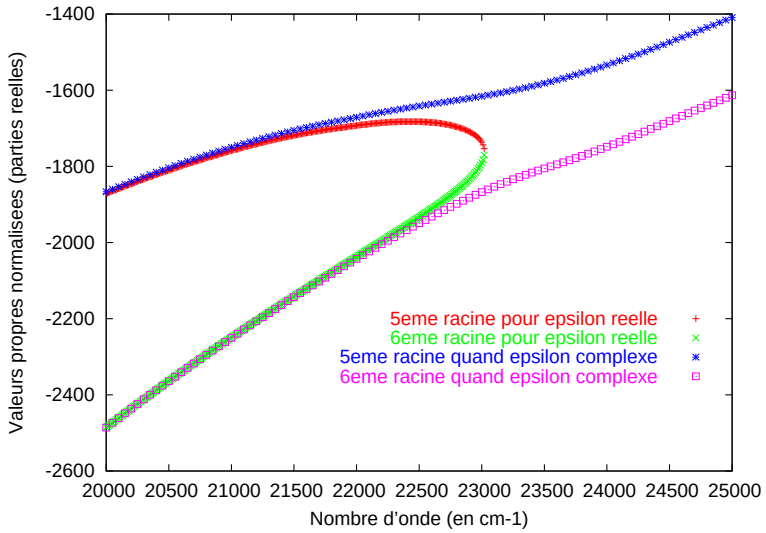


FIG. 7.6 – Courbes de dispersion des 5ème et 6ème modes propres d'un réseau simple en Argent paramétré par $d = 30$nm et $w = 5$nm (incidence normale), dans le visible ($\lambda \in [400, 500nm]$). Le lieu décrit par la paire de racines, dans la zone spectrale, change de manière inattendue quand on prend ou non en compte la partie imaginaire de ε_m. Pour le cas complexe, les 5ème et 6ème racines ont bien sûr des parties imaginaires, non représentées ici.

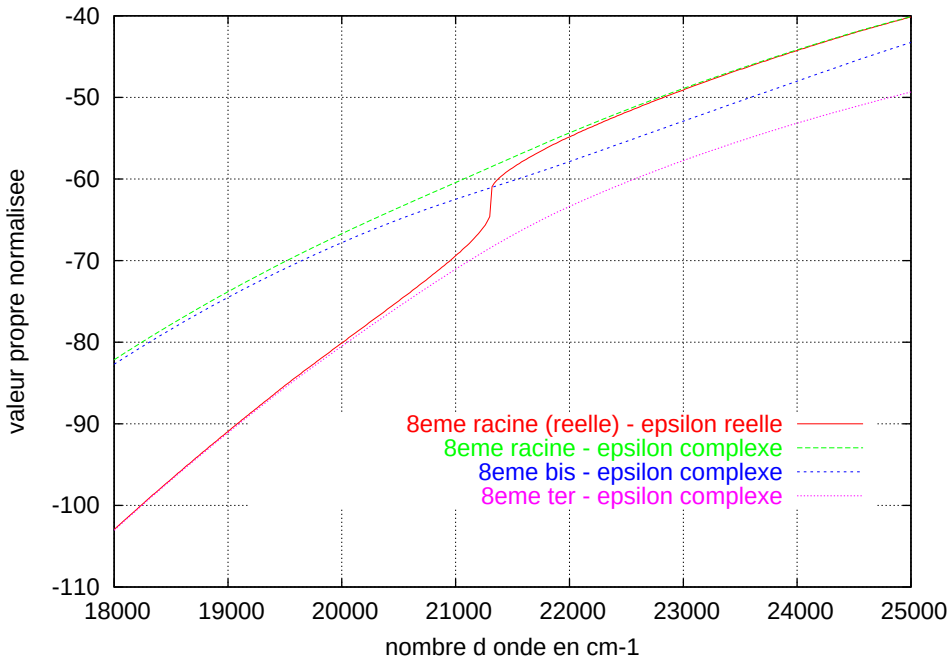


FIG. 7.7 – Réseau en Argent à 2 fentes/période, de période $D = 300$ nm, avec des fentes de largeur $w = 30$nm, et 2 strates métalliques de largeurs repectives $L_1 = 70$nm et $L_2 = 170$nm. Incidence à $\theta = 25^o$. Contrairement aux autres racines de l'EVP, on observe une déviation étrange de la courbe de dispersion décrite par la 8ème valeur propre quand ε_m est réelle. Ceci est typiquement le signe de l'existence de racines cachées, racines que l'on "branche" forcément en passant à ε_m complexe. Le calcul exact final montre effectivement l'intervention de 3 courbes de dispersion au lieu d'une !

7.2 Application au réseau à 1 cavité/période

La Méthode Modale Exacte va maintenant être appliquée pour un réseau d-périodique à 1 fente (vide) par période, dont la constante diélectrique du métal est très élevée en module. Le métal considéré sera l'Or et l'étude sera menée dans l'infra-rouge. Les paramètres géométriques sont $\boxed{d = 1\mu\text{m}}$ et $\boxed{w = 400\text{nm}}$[7]. La profondeur h n'intervient pas dans l'établissement des modes propres du réseau mais seulement dans le calcul de la réponse optique finale, en section 7.2.4. On se restreindra à l'incidence normale, ce qui facilitera la discussion des nombreux graphes qui vont suivre.

7.2.1 Courbe représentative de l'EVP

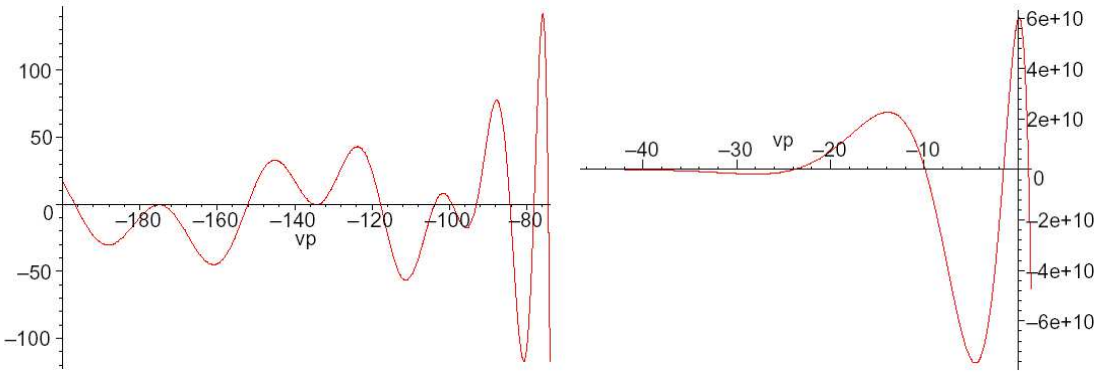


FIG. 7.8 – Courbe représentative de l'EVP (du terme total $F(\Lambda^2) - \cos(kd\sin(\theta))$ en fonction de la variable *normalisée* $(\Lambda/k)^2$, pour le réseau paramétré par $d = 1\mu$m et $w = 400$n, à la fréquence de $7500cm^{-1}$ ($\lambda = 1.33\mu m$) en incidence normale. La constante du métal est prise réelle pour la représentation graphique : $\Re(\varepsilon_m) = -73.2$ ici. Les racines de l'équation aux valeurs propres sont à l'intersection de la courbe avec l'axe des abscisses. *A droite :* variations sur le domaine où $(\Lambda/k)^2 > \varepsilon_m$. *A gauche :* comportement pour $(\Lambda/k)^2 < \varepsilon_m$.

La Figure 7.8 montre les variations du membre complet de l'EVP du réseau en fonction de la variable normalisée $(\Lambda/k)^2$, à une fréquence d'excitation donnée ($7500cm^{-1}$). Partant des abscisses positives, vers les abscisses négatives, la courbe image de l'EVP coupe l'axe des réels pour la première fois en un point qui correspond au mode fondamental. La racine $(\Lambda/k)^2$ fondamentale est toujours de l'ordre de l'unité ou plus. On observe par la suite des oscillations de très grandes amplitudes ($\sim 10^{10}$), comme évoqué en page 135. Quand $(\Lambda/k)^2$ passe sous la barre $\Re(\varepsilon_m)$, le régime oscillatoire devient plus rapide et de moins grande amplitude. Les oscillations se poursuivent indéfiniment : les intersections avec l'axe réel correspondent aux valeurs des modes propres de rang élevé.

[7] On trouvera alors une réponse optique comparable à celle que donne la méthode modale restreinte (impédance de surface) puisque cette dernière peut s'appliquer à ce choix de paramètres ; ceci constitue un bon test du programme informatique.

Puisqu'on est en incidence normale, dans cet exemple, il est possible de scindre l'EVP en 2 sous-équations transcendantes (voir section 6.3.3), dont les représentations graphiques sont en Figure 7.9. Cette scission nous conduit à trouver sans ambiguité des valeurs propres parfois trop voisines (vers -140 notamment). Vers -175, nous avons typiquement 2 racines "cachées", quasiment dégénérées, mais nous n'aurons pas besoin de prendre en compte ces racines de haut rang pour calculer la réponse du système avec une excellente précision.

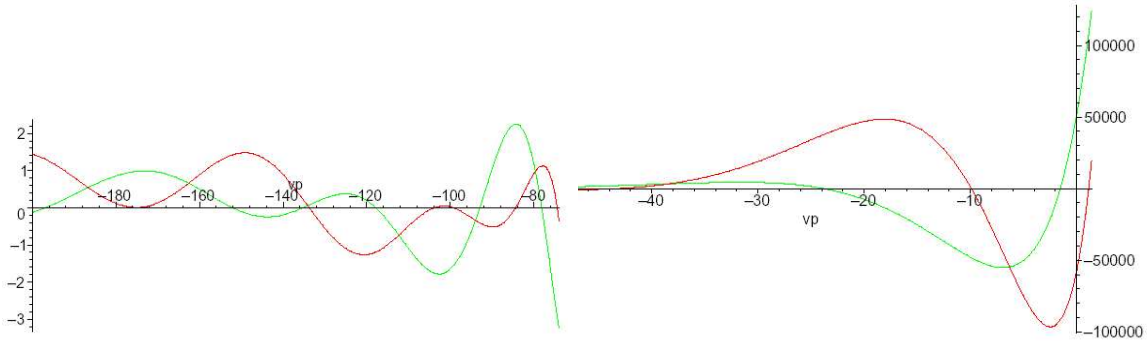


FIG. 7.9 – Courbes représentatives des 2 sous-équations (6.9) et (6.9) (voir page 138), obtenues par factorisation de l'EVP en incidence normale, sur les mêmes conditions qu'en Figure 7.8 (à $7500cm^{-1}$). En rouge (resp. vert) est représenté le membre de l'équation (6.9) (resp. (6.10)) qui donne les fonctions propres $X_l(x)$ paires du réseau (resp. impaires).

7.2.2 Caractérisation des valeurs propres

Le tableau ci-dessous indique les 12 premières valeurs propres normalisées, à la même fréquence qu'en section précédente (7500 cm^{-1} ou $\lambda = 1.33\mu m$), lorsqu'on prend en compte, ou non, la partie imaginaire de la constante relative du métal (ici, $\varepsilon_{or} = -73.20 + i7.33$). Se référer au graphe de la Figure 7.8.

En incidence normale, il n'y a aucun déphasage pseudo-périodique, c'est pourquoi les fonctions propres $X_l(x)$ seront soit paires, soit impaires, par rapport aux axes de symétrie de la structure (cf page 141), ce qu'indique le tableau (on en verra les représentations graphiques plus loin). Les racines (complexes) de l'EVP sont arrangées suivant leurs parties réelles, de la plus positive à la plus négative.

On rappelle qu'en terme de vecteurs d'onde, $\Lambda = k_y$, $k_x = \alpha = \sqrt{k^2\varepsilon_d - \Lambda^2}$ dans la cavité, et $k_x = \beta = \sqrt{k^2\varepsilon_m - \Lambda^2}$ dans le métal.

$\rightarrow$ Les premières solutions, obtenues pour $\Re[(\Lambda/k)^2] > \Re(\varepsilon_m)$, correspondent nécessairement à des **modes de cavité**, guidés ou non[8]. Ces racines sont d'ailleurs très proches de celles qu'on aurait en métal parfait, à savoir $(\Lambda_l/k)^2 = 1 - (\frac{l\lambda}{2w})^2 = 1$; -1.76 ;

[8]L'onde $X_l(x)$ est confinée dans la fente puisque alors α est réel et β imaginaire.

7500 cm^{-1}	$\varepsilon_m = -73.20$	$\varepsilon_m = -73.20 + i7.33$			
N^o racine	$(\Lambda/k)^2$	$\Re[(\Lambda/k)^2]$	$\Im[(\Lambda/k)^2]$	*nature du mode*	*parité ($\theta = 0$)*
1	1.125	1.1292012	.00680509	MC g	paire
2	-1.52	-1.527774	.01251779	MC e	impaire
3	-9.87	-9.879883	.00982387	MC e	paire
4	-23.79	-23.79581	.00536344	MC e	impaire
5	-43.28	-43.28424	-.0032708	MC e	paire
6	-68.38	-68.36550	-.0330241	MC e	impaire
7	-74.43	-74.43393	7.332218	HSP	paire
8	-78.11	-78.12722	7.343508	HSP	impaire
9	-84.33	-84.33162	7.344798	HSP	paire
10	-92.93	-92.94361	7.346831	HSP	impaire
11	-99.19	-98.99917	-.1637790	MC e	paire
12	-103.80	-104.0045	7.459996	HSP	paire

TAB. 7.1 – Tableau des 12 premières racines de l'EVP, obtenues à 7500 cm^{-1} ($\lambda = 1.33\mu m$), en prenant ou pas la partie imaginaire de ε_{or}. Les modes seront soit des modes de cavité (MC), guidé (g) ou évanescent (e), soit des modes de plasmons de surface horizontaux (HSP). La parité des fonctions propres associées est indiquée. La ligne frontière, en milieu de tableau correspond à $\Re(\varepsilon_{or})$. Toutes les ondes de surface ont des valeurs propres inférieures à cette limite : les premiers plasmons sont importants pour le calcul final, tandis que les modes de cavité numérotés 3 à 10 (évanescents) n'auront pas de poids notable.

-10.04 ; -23.84 ; -43.16 ; -68 etc. ce qui est cohérent avec le fait que l'or est un bon métal dans l'infrarouge.[9]

→ Les solutions telles que $\Re[(\Lambda/k)^2] > \Re(\varepsilon_m)$, constitue un ensemble d'**ondes de surface**, propagatives le long de l'interface horizontale du réseau (mais côté interne au réseau), dont la fréquence spatiale suivant x augmente avec le rang. Le caractère complexe des racines impliquent nécessairement un amortissement des ondes de surface. Certaines racines sont encore voisines du cas 'métal parfait', mais un nouveau type de modes apparaît, non repérable par la formule du métal parfait. L'analyse des valeurs propres *complexes* nous conduit en fait à distinguer, *parmi ces modes de surface*, 2 catégories :

1. Les **plasmons de surface horizontaux**, dont les valeurs propres sont très sensibles à la constante diélectrique du métal (elles développent notamment une partie imaginaire $\sim \Im(\varepsilon_m)$ au début, puis plus grande vers les ordres élevés). Leurs fonctions propres possèdent de fortes amplitudes dans la strate métallique, comme nous allons le voir en Figure 7.12.
2. Les **modes de cavité d'ordre élevé**, qui diffusent sur toute la surface (très évanescents suivant y, propagatif suivant x, même dans le métal ; voir Figure 7.10). Leurs valeurs propres sont très peu sensibles à la partie imaginaire de la

[9]En exploitant les formules approximées de α/k en page 221, on a, plus précisément la suite : 1.10 ; -1.53 ; -9.86 ; -23.74 ; -43.17 ; 68.16 ; 98.70

constante diélectrique, et leurs fonctions propres sont de faible amplitude (typiquement bornée entre -1 et 1).

Remarque : j'ai observé la règle suivante, systématique en incidence normale :

- 2 fonctions propres de rang successif et de même parité, sont de *nature* différente (observer notamment la partie imaginaire de leurs valeurs propres).
- 2 fonctions $X_l(x)$ dont les valeurs propres se succédent, à parties imaginaires similaires, sont de *parité* différente.

7.2.3 Interprétation physique des fonctions propres

Dans la littérature sur la Méthode Modale Exacte, il n'y a quasiment aucune information sur les fonctions propres en tant que telles. Seul l'article de P.Sheng *et al* [3] donne quelques illustrations, mais sans leur attribuer de signification physique. Pourtant, l'analyse des modes propres de la structure est très intéressante, on ne peut qu'être curieux de visualiser leurs formes afin de tirer des informations substantielles quant à la réponse potentielle du système.[10].

A) Modes de Cavité

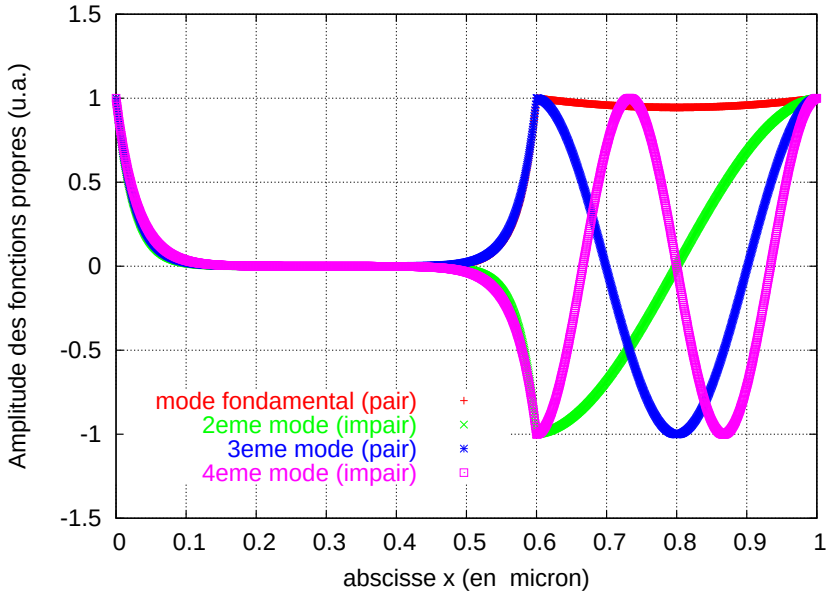


FIG. 7.10 – Fonctions propres $X_l(x)$ (partie réelle) des 4 premiers modes du réseau à $7500cm^{-1}$, en incidence normale. Domaine métallique : $x \in [0, 0.6\mu m]$. Cavité : $x \in [0.6, 1\mu m]$

D'après le tableau présenté en section précédente, nous observons sans surprise en Figure 7.11 que les premières valeurs propres correspondent bien à des modes propres

[10]Peut-être qu'une normalisation maladroite, chez tel ou tel auteur, a rendu la représentation de leurs fonctions propres trop disproportionnée pour être étudiée et interprétée.

de cavité, très semblables à ceux qu'on rencontrerait dans le cas du métal parfait (les oscillations suivant x vérifient approximativement la condition de parois parfaitement conductrices, qui implique $\alpha_l \cdot w = l\pi$). On notera que l'évanescence des fonctions propres à l'interface métallique donne directement la profondeur de pénétration du champ dans l'or, ici de plusieurs dizaines de nanomètres.

Le lecteur peut constater que les amplitudes des fonctions propres, initialement normalisées à 1 en l'origine des abscisses $x = 0$ (origine située, on le rappelle, tout à gauche d'une strate métallique d'une période de référence), restent strictement bornée entre 1 et -1 sur toute la période. Il est aisé de conclure sur la rigoureuse parité ou imparité de chacune d'elles, par rapport aux 2 axes de symétrie de la structure (axes $x = 0.3$ et $x = 0.8\mu$m). Ceci est un fait de l'incidence normale (en incidence oblique, les fonctions se déphasent en s'éloignant de l'origine).

Remarque : ces mêmes modes propres existeraient également en l'absence de périodicité, c'est-à-dire dans le cas d'une fente unique de largeur $w = 400$ nm ici. Ces modes de cavité correspondent physiquement aux plasmons de parois couplés (et leurs harmoniques), d'après ce qu'on a vu au Chapitre 2.

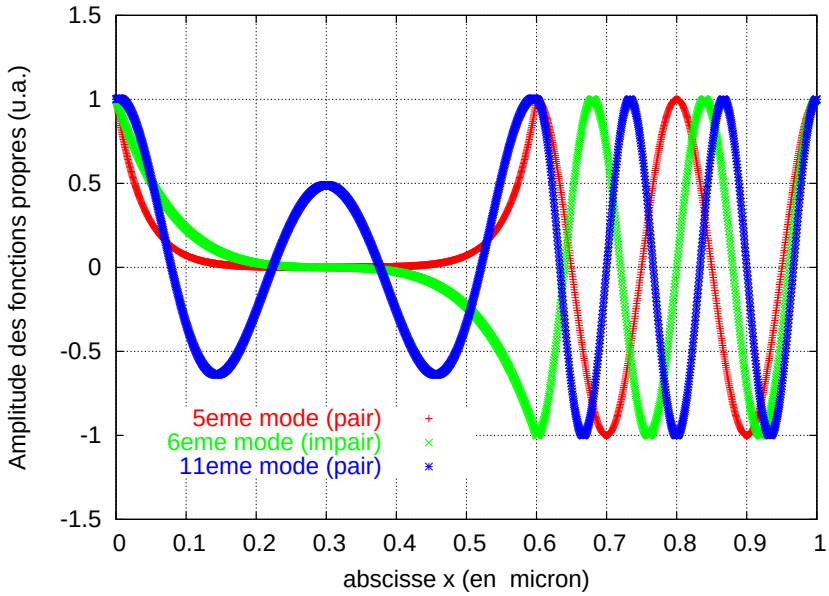


FIG. 7.11 – Fonctions propres $X_l(x)$ des modes de cavité d'ordre plus élevé. La propagation (amortie) dans le métal n'a en fait lieu qu'au niveau de la surface horizontale du réseau.

Les modes de cavité de rang encore supérieur sont, d'après ce qu'on a expliqué en section précédente, les 5, 6 et 11me modes propres, dont la description spatiale est en Figure 7.11. On constate que la propagation, dans le métal, de ces composantes modales du champ, n'apparaît qu'aux rangs élevés ; cette propagation interne est toutefois cantonnée à l'interface horizontale du réseau (α et $\beta \in R$, $\Lambda \in C$) : on a affaire

à des modes diffusés qui constituent un ensemble d'ondes "flottantes" à la surface du système.

B) Plasmons Horizontaux

Les 7 à 10me modes propres sont, eux, les premiers plasmons de surface horizontaux du métal (l'harmonique augmente avec le rang). Ces ondes, montrées en Figure 7.12, présentent également des propriétés de parité spécifiques en incidence normale. On

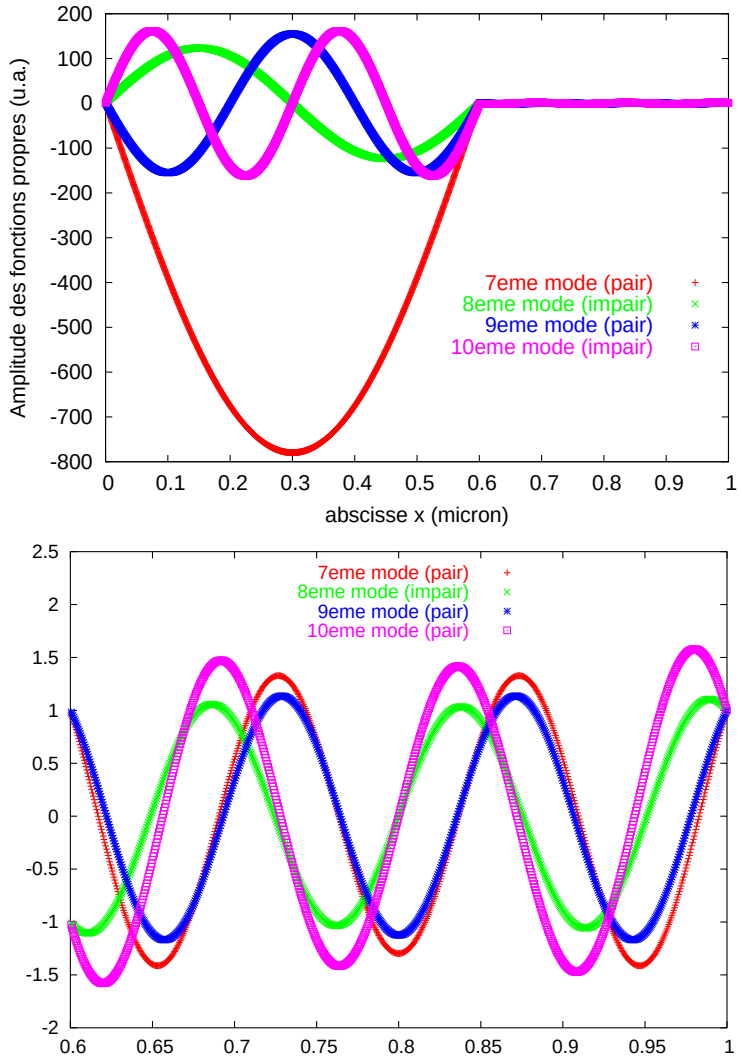


FIG. 7.12 – En haut : fonctions propres des modes de type plasmon de surface du réseau. Domaine métallique : $x \in [0, 0.6\mu m]$. air : $x \in [0.6, 1\mu m]$. En bas : zoom des mêmes modes au niveau de la cavité uniquement (sur $x \in [0.6, 1\mu m]$).

retiendra surtout qu'elles possèdent d'imposantes amplitudes au niveau de la strate métallique, puis s'effondrent en passant continûment au-dessus des cavités avec des ocillations plus rapides (zoom en bas de la Figure 7.12). Ce "pontage" du plasmon de

surface au-dessus des fentes vérifie en fait une condition de transmission résonante à travers les cavités du réseau, de période à période.

C) Coefficients d'excitation

Le Tableau suivant complète l'étude modale et indique les poids a_l et b_l des 12 premiers modes propres du réseau, toujours à $7500cm^{-1}$ en incidence normale (les coefficients a_l et b_l sont définis en pages 146 et 148).

Indice modal l	*nature du mode*	*parité*	$\|a_l\|$	$\|b_l\|$	*poids propres* $\|\Omega_{ll}\|$
0	MC g	pair	2.31	2.25	0.371
1	MC e	impair	2.08E-08	1.52E-08	0.191
2	MC e	pair	4.89E-4	4.56E-4	0.197
3	MC e	impair	3.95E-12	3.53E-12	0.198
4	MC e	pair	9.78E-08	8.77E-08	0.199
5	MC e	impair	1.26E-14	1.24E-14	0.199
6	HPS	pair	4.05E-11	4.10E-11	5122.2
7	HPS	impair	1.36E-17	6.12E-18	167.7
8	HPS	pair	9.14E-12	1.16E-11	134.3
9	HPS	impair	8.77E-19	4.84E-18	526.6
10	MC e	pair	4.45E-11	3.99E-11	0.2
11	HPS	pair	1.04E-12	2.34E-12	12.7

MC : mode de cavité (g :guidé /e :évanescent) HPS : plasmon de surface horizontal

Les poids propres Ω_{ll} correspondent aux projections de chaque fonction propre $X_l(x)$ sur son adjointe, et reflète donc l'importance de l'*amplitude* d'une fonction propre. On constate plusieurs choses à la fois :

- Le mode fondamental domine très largement les autres modes.
- Globalement, plus on va vers les ordres élevés, moins les coefficients d'excitation a_l et b_l sont grands.
- Les fonctions propres dites impaires (que ce soit des modes MC ou PS), ne sont effectivement pas excitées en incidence normale.
- A coefficients d'excitation comparables, ce sont les amplitudes des fonctions propres qui vont faire la différence.[11]

Les modes *de cavité* d'ordre $l > 0$ n'auront pas de poids significatif pour une telle géométrie sub-longueur d'onde. En revanche, les premiers plasmons de surface horizontaux sont essentiels. L'analyse de ce tableau justifie qu'il faille chercher un nombre de valeurs propres suffisamment grand (pour inclure un certain nombre d'ondes de surfaces, sans quoi le champ magnétique total serait *discontinu* aux interfaces) et pertinent (pour inclure assez d'ondes dont on sait qu'elles *auront* de l'importance).

[11]Par exemple, le coefficient d'excitation $|a_5| > |a_7|$, mais la comparaison des poids propres des modes 5 et 7 suffit à comprendre que le 5ème contribue bien moins que le 7ème.

7.2.4 Spectre de réflectivité et cartographies du champ

Nous allons maintenant simuler la réponse optique du réseau simple en Or paramétré par $d = 1\mu m$ et $w = 400nm$. Pour l'exemple, on a considéré une profondeur $\boxed{h = 1\mu\text{m}}$ et une région de transmission également métallique, en or, de sorte que le réseau travaille purement en réflexion. L'étude est toujours faite en incidence normale, dans l'infra-rouge ($\lambda \in [5\mu m, 830nm]$).

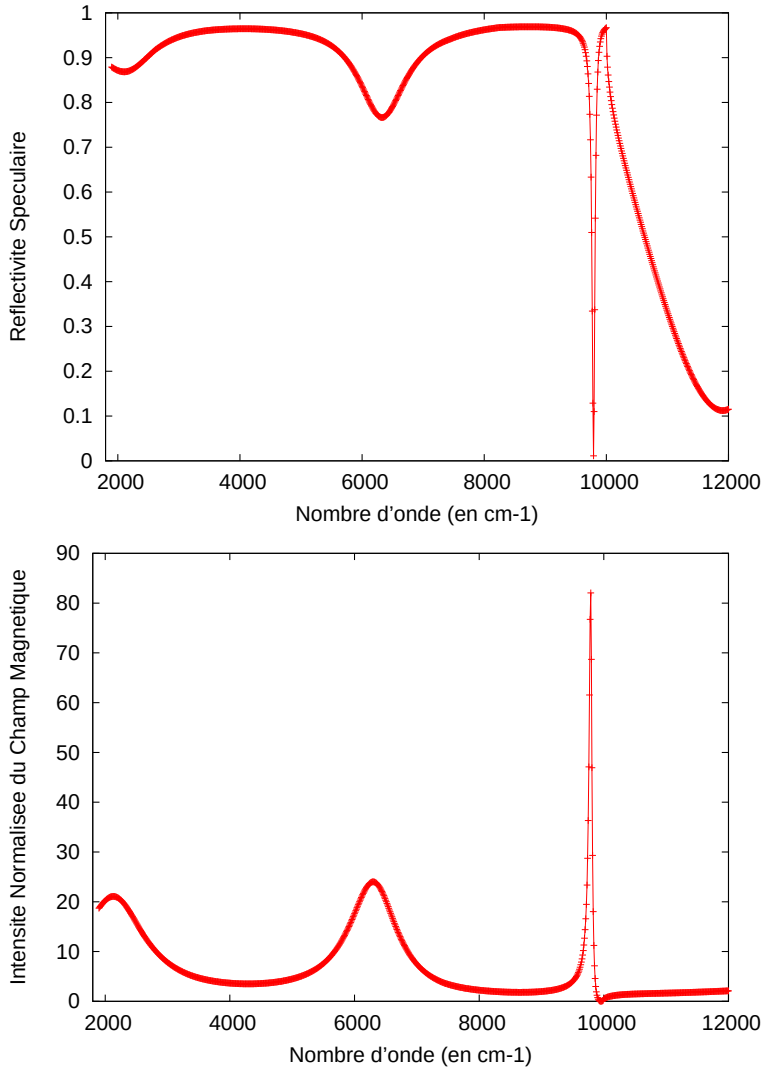


FIG. 7.13 – En haut : Spectre de la Réflectivité Spéculaire du réseau en or, paramétré par $d = 1\mu m$, $w = 400nm$ et $h = 1\mu$m, en incidence normale. En bas : Spectre correspondant de l'intensité du champ magnétique (normalisé au champ incident), au fond des cavités (en $y = -h$, au milieu).

Le calcul a été mené entre 1900 et $12000cm^{-1}$, avec 12 modes propres de réseau (*i.e.* 12 courbes de dispersion ont été préalablement établies, avec un pas spectral de 10 cm^{-1}), et 800 ordres de diffraction (modes de Rayleigh). Le calcul de la réponse optique finale ne nécessite que quelques minutes et la convergence du développement modal est très rapidement atteint.

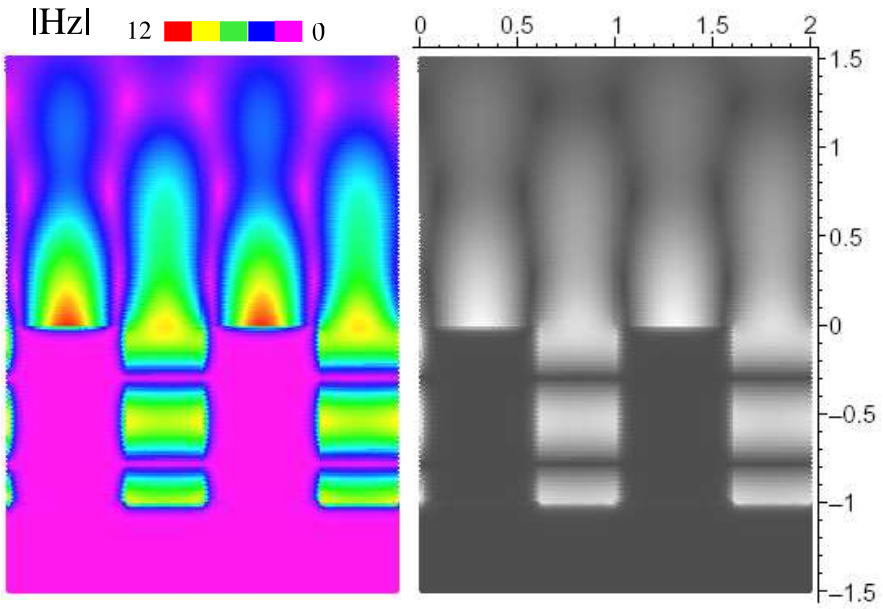


FIG. 7.14 – **Résonance du plasmon de surface** (couplé à un harmonique supérieur du mode guide d'onde de la cavité), à $9790cm^{-1}$. Cartographies du module du champ magnétique (normalisé), sur 2 périodes consécutives du réseau. Les coordonnées spatiales (x, y) sont en microns. A gauche : vision originale en couleurs, avec l'échelle de $|H_z(x, y)|$. A droite : l'équivalent en contraste de luminosité (le blanc correspond au maximum d'amplitude). Le profil du réseau y apparaît clairement.

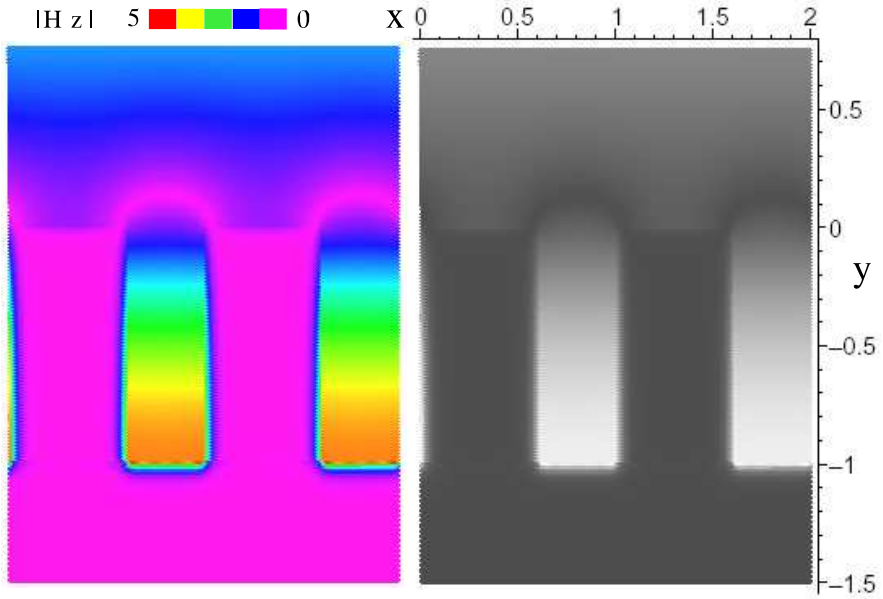


FIG. 7.15 – **Résonance fondamentale de type Fabry-Perot** à $2130cm^{-1}$. La Cartographie du module du champ magnétique (normalisé) est faite sur 2 périodes consécutives (coordonnées (x, y) sont en microns). A gauche : vision originale en couleurs, avec l'échelle de $|H_z(x, y)|$. A droite : l'équivalent en contraste de luminosité ; le blanc correspond à un maximum d'amplitude au fond des cavités.

La Figure 7.13 montre le spectre de la réflectivié spéculaire du réseau. Il fait clairement apparaître deux résonances de cavités de type Fabry-Perot (une résonance fondamentale à $2310cm^{-1}$ et un harmonique à $8300cm^{-1}$), ainsi qu'un pic dû à la résonance du plasmon de surface (à $10010cm^{-1}$). Les fréquences de ces résonances sont tout à fait celles que l'on s'attendrait à trouver pour ce choix de dimensions. La distribution de l'intensité du champ magnétique dans tout le réseau, lors de ces 3 résonances, est clairement illustrée par les cartographies spatiales des Figures 7.14 et 7.15. Le champ est quasiment inexistant à l'intérieur du métal, excepté sur une fine épaisseur de peau, aux interfaces air/or.

7.3 Application au réseau à 2 cavités/période

La Théorie Modale a été étendue, dans la première moitié du Chapitre, aux réseaux lamellaires périodiques à 2 fentes (identiques) par période (*i.e.* 4 couches par période d'un point de vue plus général). Cette section sera donc pleinement consacrée à l'application de cette extension sur un réseau D-périodique en Or à 2 fentes identiques (vide) par période, de largeur w, et séparées par le jeu de distances (L_1, L_2). Les paramètres choisis sont $\boxed{D = 1.5\mu\text{m}}$, $\boxed{w = 350\text{n}}$, $\boxed{L_1 = 700\text{nm et } L_2 = 100\text{nm}}$. La profondeur h n'intervient pas dans l'établissement des modes propres du réseau mais seulement dans le calcul de la réponse optique finale, en section 7.3.4.

7.3.1 Courbe représentative de l'EVP

Pour l'approche modale du réseau, on fixe le nombre d'onde à 4500 cm^{-1} (soit $\lambda = 2.22\mu m$). Du fait du choix des paramètres opto-géométriques, l'angle θ n'a quasiment aucune incidence sur les valeurs prises par l'EVP.

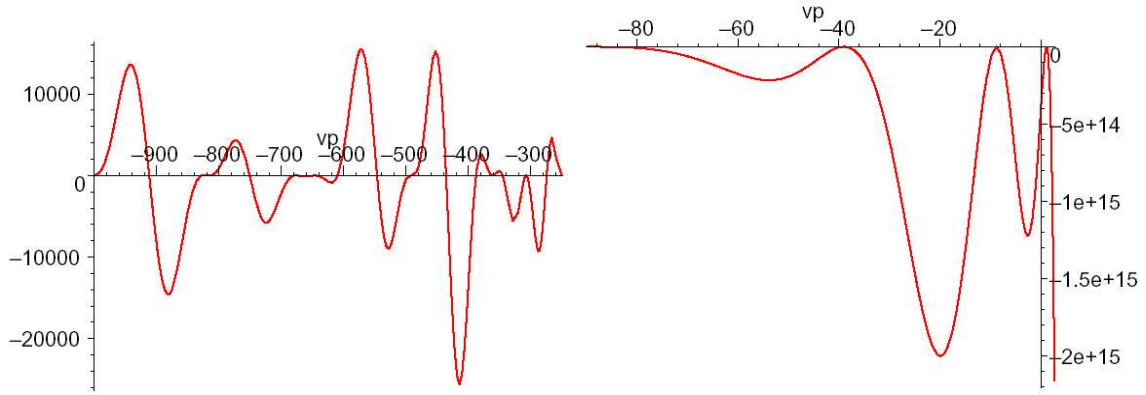


FIG. 7.16 – Représentation graphique de l'EVP du réseau à 2 fentes, à la fréquence $4500cm^{-1}$, en fonction de la variable normalisée $(\Lambda/k)^2$. La constante relative de l'or (prise réelle pour la représentation) vaut $\varepsilon_m = -183$. *A droite :* variations sur le domaine où $(\Lambda/k)^2 > \varepsilon_m$. *A gauche :* comportement pour $(\Lambda/k)^2 < \varepsilon_m$.

Les commentaires sur le changement de régime oscillatoire de l'EVP d'un réseau à 1 fente, sont également valables pour le réseau à 2 fentes. Néanmoins, l'EVP présente,

dans la structure à 2 fentes, de plus fortes amplitudes et une plus grande complexité comportementale (voir Figure 7.16). L'exemple traité ici montre une courbe représentative dont les intersections avec l'axe réel font craindre le pire quant à la recherche exacte des racines complexes. Si on regarde de près ce qu'il se passe, on constate notamment, en Figure 7.17, l'existence d'intersections par *doublets de valeurs propres* (ce qui avait été annoncé en page 136).

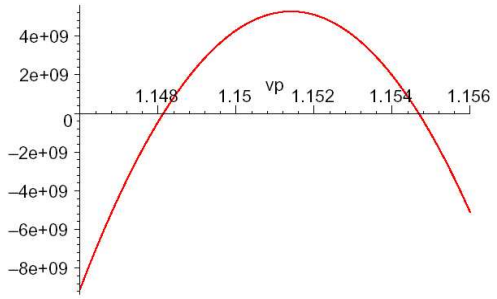


FIG. 7.17 – Détail de l'intersection de l'EVP avec l'axe des abscisses, dans la région $(\Lambda/k)^2 > 0$: mise en évidence d'un doublet de racines reserré. Il existe de nombreux autres doublets du même genre dans l'intervalle des valeurs négatives.

Ce type d'intersection n'est pas sytématique. L'existence de ces racines "jumelles" n'est pas un artefact mathématique, liée par exemple à une mauvaise représentation graphique. Elles proviennent en réalité du *couplage inter-cavités au sein même de la période à 2 fentes*. Ce couplage dépend à la fois de la distance qui sépare les fentes que de la valeur de ε_m (laquelle joue le rôle d'une barrière de potentiel). Disons juste que plus les cavités sont éloignées les unes des autres, ou plus la constante diélectrique du métal est grande en module, plus on va vers la *dégénérescence* des racines dans chaque paire, si bien que la précision calculatoire requise, pour séparer les racines, doit alors être très grande. En fait, cet éclatement en doublets reserrés ne vaut *que pour les modes de cavité, pas pour les plasmons de surface horizontaux.*

La nouveauté ici, c'est que l'équation aux valeurs propres d'un réseau à deux cavités sub-longueur d'onde donne un *doublet fondamental*, c'est-à-dire ***deux modes de guide d'onde*** permanents (en polarisation TM) : un mode où le champ est guidé en phase dans les deux cavités, l'autre où les cavités sont en opposition de phase (en omettant l'éventuel déphasage pseudo-périodique), comme on va le voir plus loin, sur la Figure 7.18. *Les deux modes guidés n'ont pas de fréquence de coupure et évoluent* ***différemment*** *quand on tend vers des cavités de largeur fortement sub-longueur d'onde.* Le comportement modal est alors plus complexe à analyser mais nous ne développerons pas davantage la question dans ce rapport (j'ai mené des travaux à ce sujet, qui restent à finaliser ; le chapitre 8 ne traitera donc que des réseaux simples).

Du fait de la grande valeur de $\Re(\varepsilon_m)$, l'EVP oscille selon de vertigineuses amplitudes, y compris au niveau des paires de racines, ce qui n'empêche pas la procédure informatique de

fonctionner sans problème (la fonction FSOLVE converge très bien), à condition de travailler avec une résolution particulièrement poussée.

On comprend clairement que "travailler avec n valeurs propres", aussi nombreuses soient-elles, ne signifie rien en soi. Certaines d'entre elles peuvent nous échapper par manque de vigilance. Les simulations qui en découleraient ne seraient pas nécessairement aberrantes (l'omission de certaines ondes électromagnétiques impliqueraient une distribution de l'énergie différente sur les autres modes propres), mais seraient tout simplement fausses.

Il se trouve que pour ce choix de paramètres, de fréquence et de métal, le terme angulaire $\cos(kd\sin\theta)$ n'a aucun impact sur les valeurs propres (si ce n'est des variations relatives de l'ordre de 10^{-8}), à cause des amplitudes extrêmement grandes de l'EVP et de la forte pente de sa courbe représentative aux intersections avec l'axe des abscisses. Le calcul des valeurs propres à un angle vaudra pour tous les autres angles ici.

7.3.2 Caractérisation des valeurs propres

Le Tableau ci-dessous donne les 16 premières racines (complexes) de l'équation aux valeurs propres pour notre réseau à deux cavités, à la fréquence de 4500 cm^{-1} ($\lambda = 2.22\mu m$), pour laquelle $\varepsilon_{or} = -183.91 + i21.27$.

N^o racine	$\Re[(\Lambda/k)^2]$	$\Im[(\Lambda/k)^2]$	*nature du mode*	*parité de* $X_l(x)$
1	1.15373	.00977	MC g	paire
2	1.14750	.00798	MC g	impaire
3	-8.7796	.0181	MC e	paire
4	-8.7929	.0142	MC e	impaire
5	-39.0394	.0138	MC e	paire
6	-39.0561	.0088	MC e	impaire
7	-89.4743	.0056	MC e	paire
8	-89.5002	-.0027	MC e	impaire
9	-160.099	-.0152	MC e	paire
10	-160.152	-.0356	MC e	impaire
11	-186.431	21.276	HSP	paire
12	-193.989	21.280	HSP	impaire
13	-206.590	21.285	HSP	paire
14	-224.240	21.297	HSP	impaire
15	-246.920	21.344	HSP	paire
16	-250.895	-.0912	MC e	paire

TAB. 7.2 – Tableau des 16 premières racines (complexes) de l'EVP, obtenues à 4500 cm^{-1} ($\lambda = 2.22\mu m$), fréquence pour laquelle $\varepsilon_{or} = -183.91 + i21.27$. Les modes sont soit des modes de cavité (MC), guidé (g) ou évanescent (e), soit des modes plasmons de surface horizontaux (HSP). La parité des fonctions propres associées est renseignée. Les modes de cavité se présentent par doublets tandis que les plasmons de surface sont singuliers. La ligne frontière, en milieu de tableau correspond à $\Re(\varepsilon_{or})$. Toutes les ondes de surface ont des valeurs propres inférieures à cette limite : les premiers plasmons sont importants pour le calcul final, tandis que les modes de cavité numérotés 3 à 10 (évanescents) n'auront pas de poids notable.

Il indique aussi la nature des fonctions propres, et leur parité par rapport aux axes de symétrie de la structure (l'une ou l'autre des deux médiatrices des strates métalliques) dans le cas de l'incidence normale. Le lecteur se réfèrera à la section suivante pour en voir les illustrations. L'alternance des parités, dans chaque paire de racines, signifie que deux cavités d'une période donnée voient un champ électromagnétique similaire, tantôt en phase, tantôt en opposition de phase[12].

7.3.3 Interprétation physique des fonctions propres

On reste toujours dans les conditions $\theta = 0^o$ et $1/\lambda = 4500cm^{-1}$. Le lecteur se réfèrera au tableau de la section précédente. L'ensemble des commentaires faits pour le réseau simple vaut également pour le réseau à deux cavités. La Figure 7.18 permet de visualiser à quelles fonctions propres renvoient les fameux doublets de racines dont on parlait dans l'étude de l'EVP.

Chaque doublet modal est issu du couplage des modes de cavité qu'on aurait initialement dans un réseau simple : la structure à 2 fentes possède un degré de liberté supplémentaire et nous pouvons voir directement, ici, les nouveaux jeux de déphasages qu'il peut exister entre les champs perçus par les différentes fentes d'une même période. Notons qu'à travers les strates métalliques, les champs pairs peuvent *tunneler*, tandis que les champs dits impairs passent par un *noeud*.

Dans le cas du métal réel, *le fait que les 2 cavités d'une période puissent résonner en phase ou en oppositon de phase apparaît explicitement sur l'allure des modes propres de la structure*. Dans le cas du métal parfait, cette possiblité de résonance est *implicite*, les fonctions propres de chaque doublet de racines se confondent, par dégénérescence, en une seule et même description spatiale (voir la Figure 7.19).

Enfin, la Figure 7.20 illustre les fonctions propres relatives à ce que nous avons désigner comme les plasmons de surface horizontaux du système périodique. Contrairement aux modes de cavité, elles sont caractérisées par de très grandes amplitudes dans la partie métallique. Elles vérifient cependant des propriétés de parité similaires à celles des modes de cavité.

[12] A titre de comparaison, la formule donnant les modes propres pour un *métal parfait* donnerait la séquence de racines 1, -9.06, -39.23, -89.52, -160, -250.45 etc : le couplage des modes inter-cavités ne pouvant pas avoir lieu en métal parfait, aucune levée de dégénérescence n'apparaît (chaque fente de la période est le siège de fonctions propres parfaitement identiques).

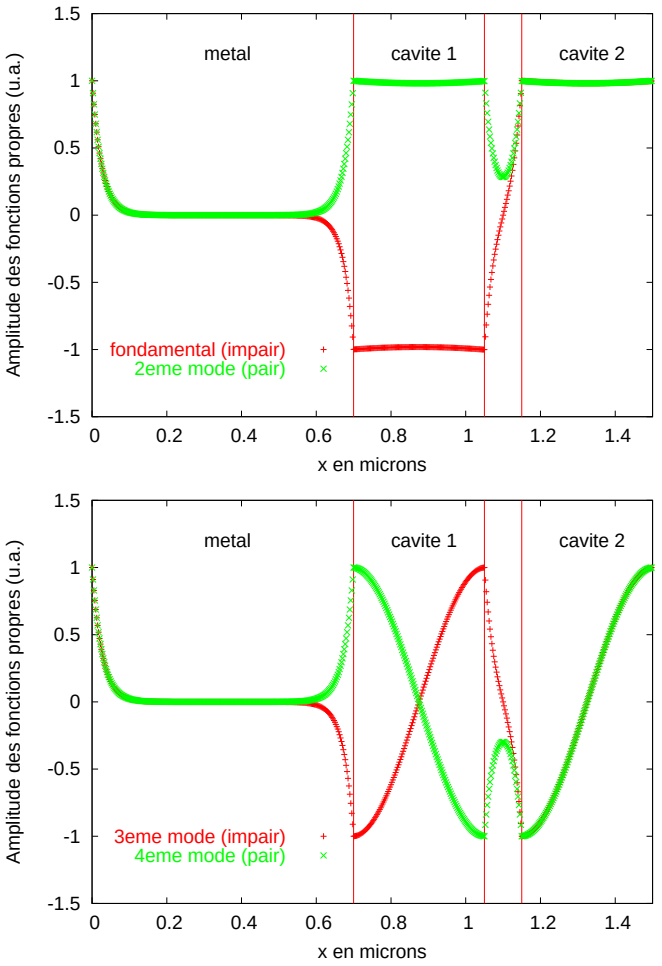


FIG. 7.18 – **Allure des fonctions propres** relatives aux quatre premières valeurs propres du tableau 7.2. *A gauche :* doublet fondamental (modes de cavité guidés). *A droite :* second doublet (modes de cavité évanescents). On est en incidence normale. Chaque doublet contient une fonction propre symétrique (paire) et antisymétrique (impaire).

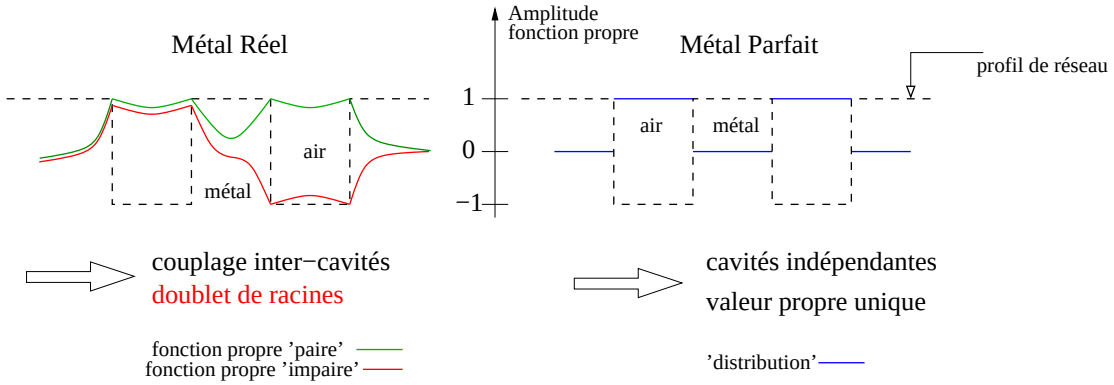


FIG. 7.19 – Levée de dégénérescence du mode guide d'onde de deux cavités couplées, quand on considère $|\varepsilon_m|$ finie (à gauche) ou infinie -pas de couplage interne- (à droite).

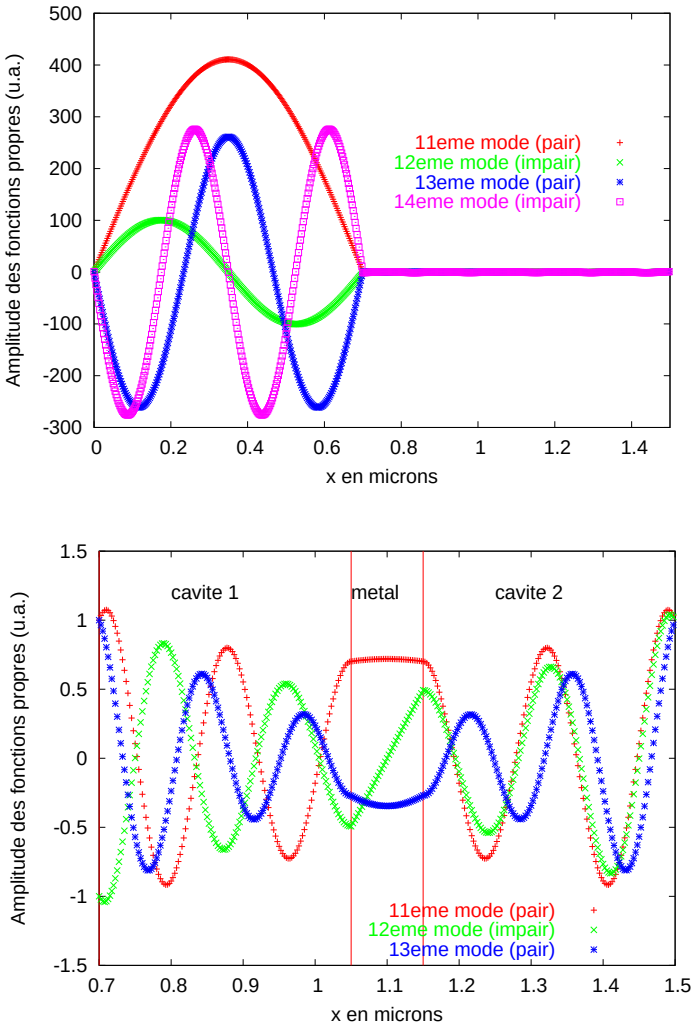


FIG. 7.20 – **Fonctions propres des premiers plasmons de surface horizontaux**, associés aux 11ème à 14ème valeurs propres du tableau 7.2, en incidence normale. *A gauche :* représentation à l'échelle de toute la période D en fonction de x (en microns). *A droite :* zoom des mêmes fonctions dans la région des deux cavités, séparées par la strate métallique de largeur $L_2 = 100nm$.

7.3.4 Spectre de réflectivité et cartographies du champ

Le calcul final de la réponse optique du réseau à 2 fentes/période (paramétré par $D = 1.5\mu$m, $w = 350$nm, $L_1 = 700$nm et $L_2 = 100$nm), a été mené avec une profondeur $\boxed{h = 400\text{nm}}$ et un milieu de transmission (III) également métallique, en or. Sur la Figure 7.21, nous observons, comme attendu, la résonance classique du guide

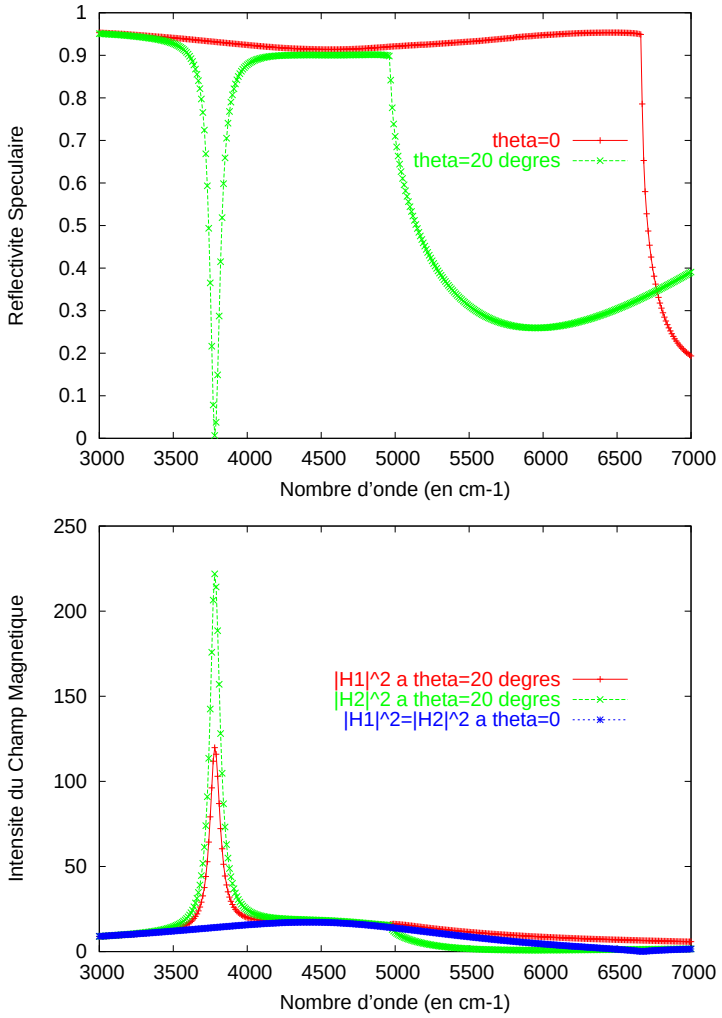


FIG. 7.21 – **Spectres de réponse du réseau à 2 cavités**, dans l'infra-rouge, en incidence normale ($\theta = 0$) et oblique ($\theta = 20^o$). Les champs magnétiques ont été relevés au fond de chaque cavités. 16 modes propres de réseau ont été pris en compte (pour donner une idée, le temps de calcul est d'environ un quart d'heure avec la station de travail à disposition).

d'onde quand $\theta = 0^o$ (vers $4500cm^{-1}$), ainsi que celle du plasmon de surface horizontal (à $6600cm^{-1}$). Le passage à $\theta = 20^o$ entraîne un décalage du plasmon vers les basses fréquences et l'émergence de la fine et intense résonance antisymétrique, où les deux cavités, au sein de chaque période, sont pratiquement en opposition de phase (et couplées en champ proche). La brutale chute de la réflectivité spéculaire révèle la nature faiblement radiative du mode et confirme ce qui a été dit au Chapitre 4.

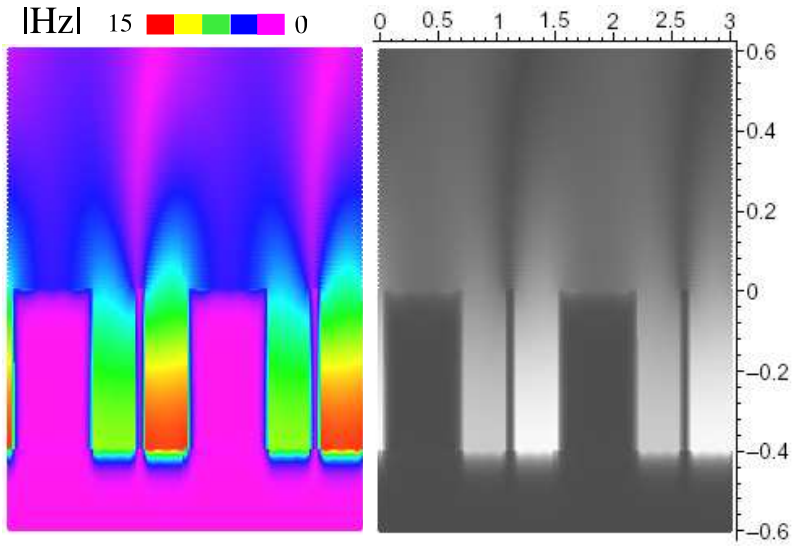


FIG. 7.22 – **Résonance Fabry-Perot antisymétrique** dans le réseau à 2 fentes /période, à $3780cm^{-1}$ et $\theta = \mathbf{20^o}$. Cartographies du module du champ magnétique (normalisé), sur 2 périodes consécutives du réseau. Les coordonnées spatiales (x, y) sont en microns. A gauche : vision originale en couleurs, avec l'échelle de $|H_z(x, y)|$. A droite : l'équivalent en contraste de luminosité (le blanc correspond au maximum d'amplitude). Le profil du réseau y apparaît clairement.

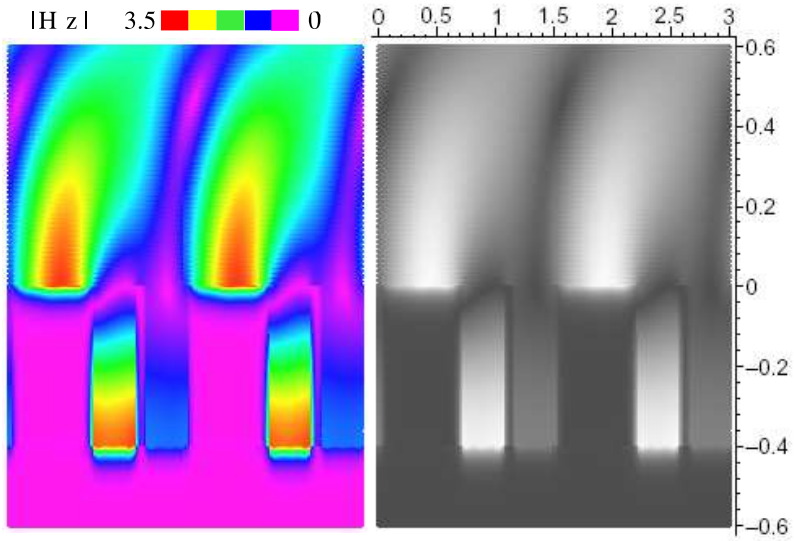


FIG. 7.23 – *Idem* cartographie précédente, mais à 5800 cm^{-1} ($\theta = 20^o$) : **résonance du plasmon de surface horizontal**, couplé aux modes guide d'onde des 2 fentes (on rappelle qu'il y a 2 modes fondamentaux de guide d'onde dans un réseau à 2 cavités par période).

7.3.5 Cas du réseau en transmission

Il est intéressant de regarder ce qu'il se passe si la région (III) du réseau à 2 fentes par période n'est plus métallique, mais vide ($\varepsilon_{III} = 1$). La question est notamment de savoir si les résonances de cavité observées en section précédente sont transmissives ou non. Le problème est à mettre en relation avec les résonances symétrique et antisymétrique analysées au Chapitre 4 sur le système bifente.

Par commodité, on veut que les résonances Fabry-Perot du réseau en transmission arrivent à peu près dans la même zone spectrale que celles du réseau en réflexion (section précédente) ; il faut alors prendre une profondeur double $\boxed{h = 800nm}$[13] (les autres paramètres sont inchangés).

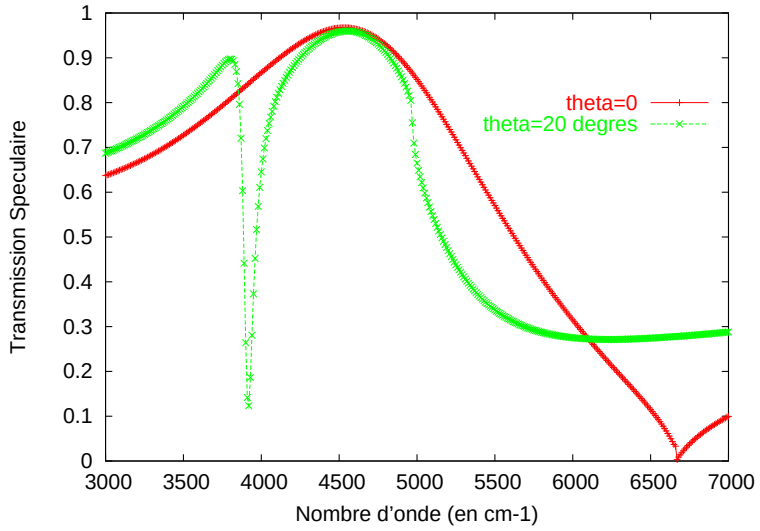


FIG. 7.24 – **Spectre de la transmission spéculaire** ($T_0T_0^*$) du réseau à 2 fentes, dans le cas d'une transmission vers le vide ($\varepsilon_I = \varepsilon_{III} = 1$). Les paramètres latéraux sont les mêmes qu'en Figure 7.21, mais avec une profondeur $h = 800$nm cette fois. La réponse optique est toujours étudiée dans l'infrarouge, en incidence normale ($\theta = 0$) et oblique ($\theta = 20^o$). 16 modes propres de réseau ont été pris en compte pour ce calcul.

La Figure 7.24 montre deux spectres de la transmission spéculaire du réseau à 2 fentes. On voit qu'en incidence normale, on a une transmission qui peut être quasi-totale et qui est due à l'excitation du seul mode Fabry-Perot symétrique. La résonance en phase des cavités est forcée, d'où le profil spectral lorentzien. En incidence oblique, on excite, en plus, le mode Fabry-Perot antisymétrique, qui se traduit par une résonance fine et plus intense située vers $3900cm^{-1}$. La transmission spéculaire chute alors brutalement. Ce comportement montre que le caractère quadrupolaire du mode antisymétrique se retrouve bien de l'autre côté du réseau (interface II/III).

[13] On rappelle que la résonance F-P fondamentale apparaît quand $kh \approx \pi/2$ pour un réseau en réflexion, et $kh \approx \pi$ pour un réseau en transmission vers le vide.

Une transmission importante à travers des ouvertures sub-longueur d'onde n'est donc pas nécessairement le signe d'une plus forte exaltation de la lumière en surface. D'ailleurs, dans le cas de l'incidence normale, on distingue bien l'excitation d'un plasmon de surface, vers $6600cm^{-1}$, sur les deux interfaces horizontales du réseau, qui *ne* conduit *pas*, cependant, à une transmission résonnante.

7.4 Conclusion des chapitres 6 et 7

La théorie modale des systèmes à pertes est un problème mathématique qui n'a rien d'évident ; on peut en dire tout autant sur l'exploitation numérique. Le traitement modal du réseau périodique gravite autour de l'obtention puis de la résolution d'une équation transcendante dont les racines (*a priori* complexes) donnent les modes propres électromagnétiques du système. Le cas des matériaux à pertes (ε complexe) pose quand même une problématique sérieuse : la nécessité de déterminer la base adjointe des fonctions propres du réseau pour effectuer des projections rigoureusement orthogonales et écrire le développement modal du champ de manière unique. Au final, la masse de calculs analytiques qu'exige la méthode est assez conséquente (et fastidieuse).

Les programmations numériques mises en place (l'une, spécifique à la résolution de l'équation aux valeurs propres, une autre, pour le calcul des champs proches et lointains) semble avoir montré une bonne efficacité et solidité. L'exploitation numérique de la méthode fut l'occasion de caractériser en détail les courbes de dispersion des modes propres d'un réseau métallique à 1 ou 2 cavités par période, de donner une signification physique à chacun d'eux et de visualiser leurs distributions de champ associées. L'allure des spectres de réponse optique peut alors être mise en relation avec l'existence et l'excitation des différentes "fonctions d'onde" du réseau.

S'ils arrivent, les problèmes d'instabilité apparaissent généralement lorsque les paramètres des réseaux métalliques, notamment la période, sont grands (de l'ordre de la longueur d'onde) et que la constante diélectrique du métal est élevée en module (par exemple, un réseau simple en or de période $d > 1.5\mu$m dans l'infra-rouge). Ceci est dû au fait que le programme informatique utilise des relations faisant intervenir des cosh et sinh de grande valeur, qui peuvent induisent des erreurs numériques, en particulier dans le calcul des fonctions propres. Dans ce cas, le calcul avec 8 chiffres significatifs n'est pas suffisant. Davidson[14] a bien souligné que la mise en place d'un algorithme avec une "double-double" précision peut être nécessaire. C'est un problème qui pourra être résolu de cette manière ou d'une autre (reformulation adaptée du programme).

[14]M.P. Davidson, Journal of Modern Optics, **50**, 1817 (2003).

Chapitre 8

Absorption Optique Anormale et Exaltations de Surface

8.1 Introduction

Une Absorption Optique dite Anormale (AOA) est systématiquement observée sur des films métalliques déposés sur un substrat froid ($T < 200K$), dans une gamme spectrale où les métaux sont habituellement peu absorbants (le visible). De plus, on observe expérimentalement une forte exaltation de la diffusion Raman des molécules déposées sur ces films : c'est l'effet SERS (*Surface Enhanced Raman Scattering*). L'absorption anormale s'expliquerait par un piégeage efficace de la lumière dans les défauts de surface, du fait de résonances électromagnétiques qui pourraient conduire conjointement aux exaltations du signal Raman. L'idée a été avancée que ces résonances (exceptionnelles) avaient lieu, non pas en surface des films froids, mais *dans* les dislocations superficielles (pores) d'échelle nanométrique. Cependant, on n'a jamais établi de calcul confirmant cette hypothèse.

Je me suis donc attaché à démontrer, et à expliquer, en me basant sur le modèle simplifié du réseau périodique et grâce à la Méthode Modale Exacte, que des surfaces à rugosité fortement sub-longueur d'onde peuvent supporter des exaltations intenses et très localisées, et qu'en particulier des résonances de type Fabry-Perot efficaces peuvent avoir lieu *dans des rainures dont la profondeur peut être plusieurs dizaines de fois inférieures à la longueur d'onde*. La physique des plasmons de surface *au sein de* ces cavités tiendra un rôle central. Ce sera aussi l'occasion de détailler un certain nombre de propriétés qui montrent quels sont les réseaux (nanométriques) présentant les plus hauts facteurs d'exaltations.

8.1.1 Le phénomène du Signal Raman Exalté en Surface

La diffusion Raman est un processus inélastique à 2 photons, au cours duquel une molécule excitée d'un cristal absorbe ou émet un phonon (acoustique ou optique) [1]. La polarisabilité électronique de la molécule s'écrit comme une série de puissances de l'amplitude des phonons en présence (les quanta de vibration du cristal). Sous l'action

d'un champ électrique de pulsation ω, le moment dipolaire alors induit dans la molécule rayonne (entre autres) des photons de fréquence $\omega \pm \Omega$ où Ω est la fréquence des phonons en question. En ce sens, la spectroscopie Raman explore les fins niveaux de vibration d'une molécule et fournit des informations sur sa structure chimique et son interaction avec l'environnement local.

La diffusion Raman *spontanée* d'une molécule *individuelle*, non-fluorescente, vaut environ 10^{-14} fois la diffusion de fluorescence d'une molécule de colorant. Pour observer la signature Raman d'une molécule unique, avec un bon rapport signal sur bruit, il faut donc tenter de combler ces 14 ordres de grandeur. En 1974, FLEISCHMANN *et al* [2] ont montré qu'une *exaltation* de la diffusion Raman de molécules pouvait être obtenue lorsque ces dernières étaient déposées sur des *surfaces métalliques rugueuses* : c'est l'effet **SERS** (*Surface Enhanced Raman Scattering*). Depuis cette date, et malgré l'abondance des recherches, il n'y a toujours pas de théorie globale et définitive permettant d'expliquer clairement les processus à l'origine de cet effet d'exaltation extrinsèque. Actuellement, deux types de mécanismes semblent être relativement identifiés ([3] [4] [5]) :

1) ceux qui conduisent à des ***exaltations géantes et localisées du champ électrique***, en des endroits de la surface métallique communément appelés "points chauds", véritables sièges de plamons-polaritons résonants, soumettant les molécules situées dans leur voisinage à un processus amplifié

2) les mécanismes conduisant à une ***exaltation d'origine chimique***, dont le rôle est bien moindre, en tout cas plus obscur[1], et qui serait responsable des phénomènes de sélectivité observés (il n'y a jamais de SERS pour certaines espèces; certains ions renforcent ou annihilent l'effet d'exaltation).

Le signal Raman d'une molécule unique a été observé pour la première fois en 1997 par différentes équipes, sur des agrégats de colloïdes d'argent ([6], [7]).

Le facteur d'exaltation G de l'intensité Raman est defini par

$$G = |\frac{E_{loc}(\omega) \cdot E_{loc}(\omega)}{E_{inc}(\omega \pm \Omega) \cdot E_{diff}(\omega \pm \Omega)}|^2 \approx |E_{loc}(\omega)|^4$$

Où E_{inc} est le champ incident, de pulsation ω, E_{diff} le champ diffusé par le processus Raman, E_{loc} le champ électrique local (au niveau des molécules) et Ω la pulsation des phonons en jeu ($\Omega << \omega$). Il dépend donc *quadratiquement du champ électrique local normalisé*. Dans une expérience SERS type, G est de l'ordre de 10^6, les exaltations électromagnétiques y contribuant (au moins) à hauteur de 10^4, et l'effet chimique y contribuant (tout au plus) à hauteur de 10^2. Suivant ce qu'on a dit plus haut, G doit valoir 10^{14} pour espérer avoir le signal Raman d'une molécule unique (10^7 en terme d'intensité du champ).

[1] Il se formerait d'une part un complexe entre le métal et la molécule adsorbée, et d'autre part, se créerait un nouvel état de "transfert de charge résonant" entre les deux entités.

8.1.2 Les films métalliques déposés à froid

Les couches minces fabriquées par dépôt de métal noble ou alcalin sur des substrats portés à *basse* température (150K), sont parfois appelées "films froids". Une propriété caractéristique de ces films est qu'ils présentent toujours une *bande d'absorption* dans des régions spectrales où les métaux employés sont normalement de *bons réflecteurs* (exemple de l'Argent dans le visible [8]). Cette Absorption Optique est alors qualifiée d'*Anormale* (**AOA**) (voir Figure 8.1). Si nous avons introduit l'effet SERS dans le paragraphe précédent, c'est qu'il y a justement une connexion des plus intéressantes : les molécules déposées à la surface des films froids voient, en effet, leur signal Raman *exalté*.

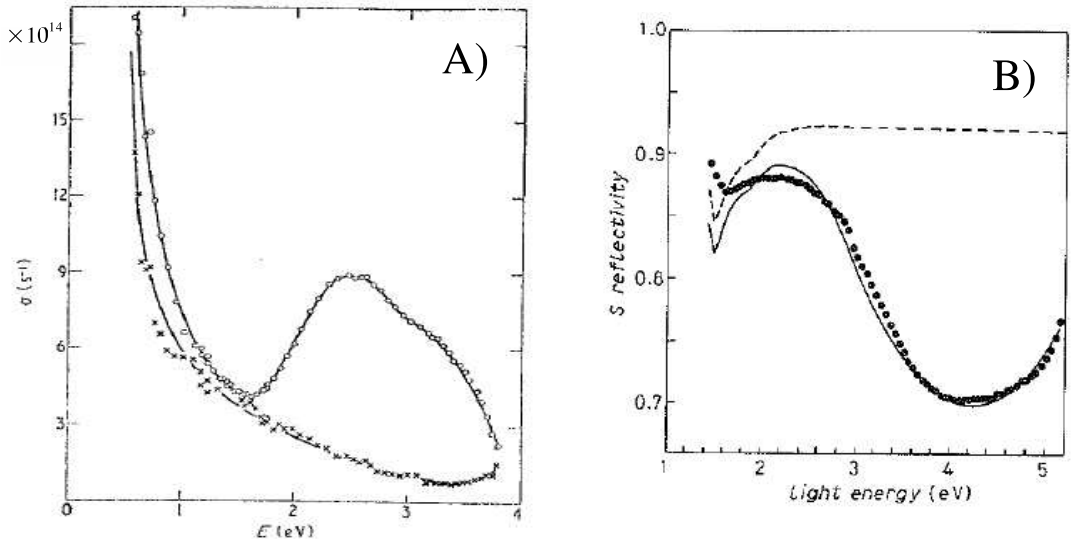


FIG. 8.1 – A) Partie réelle de la conductivité optique ($\propto$ absorption) d'un film opaque en **argent** [8] : ○ mesuré immédiatement après évaporation sur un substrat de sapphire maintenu à $140K$; × mesuré après réchauffement. La bande d'absorption anormale est centrée autour de 2.4 eV. B) Spectres de réflectivité d'un film d'**aluminium** de $60nm$ déposé à froid (incidence normale de la lumière) [**?**] : • expérience ; en traits pointillés, réflectivité d'une surface plane en Al (calculée) ; en trait plein, réflectivité modélisée par un milieu effectif (composé Al/vide).

L'expérience montre que le SERS et l'AOA apparaissent sur les mêmes échantillons [9]. Lors du réchauffement, l'AOA se décale vers les hautes fréquences, avant une disparition rapide et définitive, tandis que le signal SERS perd en intensité jusqu'à disparition complète à température ambiante (les surfaces ne sont plus SERS-actives). L'absorption anormale et l'exaltation de la diffusion Raman auraient donc une origine commune : expliquer le premier effet aiderait à comprendre l'autre.

L'AOA est le signe manifeste qu'une partie de la lumière incidente reste emmagazinée en des endroits spécifiques à la surface de l'échantillon (en fait sous la forme de polaritons), du fait de résonances localisées. Une absorption due à une modification des propriétés électroniques des couches minces (états de surface, etc.) paraît peu probable. Il faut que le film soit métallique (rôle des plasmons à déterminer), et que la surface

présente des dislocations ou des défauts de taille atomique (soit le métal est déposé à froid, soit il est pauvrement cristallisé à température ambiante). De fait, on a cru, au départ, que le SERS avait son origine à la surface externe des films froids, grâce aux plasmons excités par la rugosité. Mais l'excitation du plasmon de surface du métal est très bien identifiée, persiste sur des films réchauffés, et *n'apparaît pas* dans le domaine spectral où se manifeste l'AOA . Tout ceci indique plutôt que l'AOA et le SERS sont liées par des exaltations ayant lieu dans les jonctions des microcristaux métalliques, où les molécules préalablement déposées sont piégées (voire agrégées) et soumises à des *résonances intersticielles.*

La mise en évidence de l'absorption anormale par des surfaces rugueuses remonte au début des années 1900. Ayant observé les propriétés optiques des films granulaires en potassium et sodium, Robert WOOD affirmait, dans un article pour le moins visionnaire [10], suite aux travaux de Rayleigh, que les "cavités entre les cristaux métalliques agissaient comme des résonateurs sélectifs, absorbant les ondes lumineuses".

Plus tard, l'expérience d'ALBANO *et al* [11], publiée en 1983, faisait également état du caractère "poreux" des films froids en Argent, soulignant l'existence de cannelures de profil nanométrique en bordure de grains (Figure 8.2). Les auteurs ont montré que le SERS n'avait lieu que lorsque l'essentiel des molécules déposées (pyridine en l'occurrence) occupait l'*intérieur* des crevasses, pourvu que la température de l'échantillon soit suffisamment basse (pas trop basse, de sorte que les molécules déposées puissent migrer dans les pores, du fait de l'agitation thermique, mais pas trop haute non plus, pour ne pas refermer les creux). Un ensemble de relevés expérimentaux les avaient ainsi amenés à penser à un profil de surface en forme de plateaux séparés de pores profonds (Figure 8.2). Les interstices constituaient par déduction les "sites actifs" de l'exaltation, et l'intensité électromagnétique interne à ceux-ci fut estimée ($G \sim 10^4$, [11]).

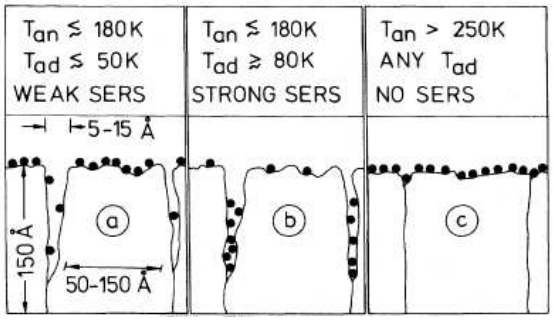


FIG. 8.2 – Profil schématique de la structure géométrique du film d'Argent, pour des températures croissantes ($T_{annealing}$) [11]. L'adsorbtion des molécules de pyridine (•) dans des pores intercristalins profonds (< 20Å) conduit à une signal Raman fort.

La découverte du SERS a motivé d'importants travaux, à la fois théoriques et expérimentaux, sur les propriétés optiques des réseaux métalliques et les résonances électromagnétiques pouvant s'y produire. Dans la lignée des travaux d'Albano, A.WIRGIN

et T.LOPEZ-RIOS [12] (1984) proposèrent de traiter théoriquement le "film froid" comme un réseau *lamellaire* (unidimensionnel) de *gravures profondes*. Ce modèle rendait bien compte du fait que les espaces situés *entre* les crans métalliques (cavités) étaient les lieux de fort champ électromagnétique (il s'agissait, bien sûr, des résonances de guide d'onde, lesquelles n'auront été mises en évidence expérimentalement, dans l'infra-rouge, qu'en 1998 par T.López-Ríos *et al* [13]). Les auteurs montraient notamment que l'intensité des résonances augmentait avec l'étroitesse des gravures, tandis que la fréquence dépendaient essentiellement de la profondeur. Bien sur, la décomposition de Fourier d'une véritable surface rugueuse serait une superposition de multiples modulations périodiques. Enfin leur modèle considérait les parois de cavité parfaitement conductrices, une approximation qui ne pouvait être valide et rendre compte des effets réels lorsqu'on tendait vers des motifs extrêmement petits. Ils recouraient ainsi à de grands rapports d'aspect ($w = 50$Å, $h = 1100$Å) et obtinrent un $G \sim 10^8$ qui ne tenait pas compte de l'absorption dans les cavités résonantes.

Le calcul des exaltations électromagnétiques dont ces petites géométries peuvent être le siège est difficile, et nécessite le recours à une théorie plus précise. La Méthode Modale Exacte que nous avons mise au point nous a permis de calculer rigoureusement les champs et la réflectivité des réseaux lamellaires.

8.1.3 Le réseau fortement sub-λ comme modèle d'approche

L'idée soutenue consiste à dire que les zones du film froid où la lumière est "naturellement" localisée et exaltée, sont potentiellement celles qui conduisent à l'effet SERS lorsqu'on y dépose des particules. Tout porte à croire que les défauts de surface de type "cavités ultra sub-longueur d'onde", sont les sites actifs les plus prometteurs pour générer le SERS. Encore faut-il démontrer la possibilité d'exaltations électromagnétiques extrêmement intenses à leur endroit. C'est pourquoi nous avons décidé d'étudier des réseaux périodiques (unidimensionnels) de gravures nanométriques.

D'un point de vue essentiellement géométrique, on ne peut pas s'expliquer comment une cavité métallique, dont la section transverse est très fortement sub-longueur d'onde, puisse résonner dans le domaine spectral observé. *C'est qu'un phénomène bien particulier, non lié au désordre en surface, émerge peu à peu en allant vers les géométries miniatures.* Nous allons tenter de cerner la physique qui entre en jeu et prouver que les cavités miniatures peuvent être le siège d'exaltations géantes (on parle là d'intensités plusieurs dizaines de milliers de fois supérieures à celle du champ incident).

En pratique, le SERS a lieu dans le visible pour l'Argent et l'Aluminium, mais seulement dans le rouge pour le cuivre, et l'or. L'absorption de ces deux derniers métaux (plus forte à haute fréquence) joue donc un rôle à quantifier. Les expériences ont montré que l'argent est de loin le meilleur métal pour le SERS. Les spectres que je présenterai porteront donc sur le cas du réseau en Argent dans le visible (réseaux en réflexion, bien sûr). Je m'occuperai uniquement de l'Absorption Anormale des réseaux nanométriques, dont je simule la réflectivité, en relation avec les exaltations internes aux cavités.

8.2 Résultats obtenus par la méthode modale exacte

8.2.1 Comparaison de l'AOA observée sur des films d'argent avec l'absorption calculée d'un réseau

Afin d'établir des parallèles entre les simulations effectuées sur le réseau fortement sub-longueur d'onde, d'une part, et de réelles situations expérimentales d'autre part, je me suis inspiré de deux relevés topographiques de film d'Argent déposé à froid (images par microscopie à effet tunnel (STM)), présentés en Figure 8.3.

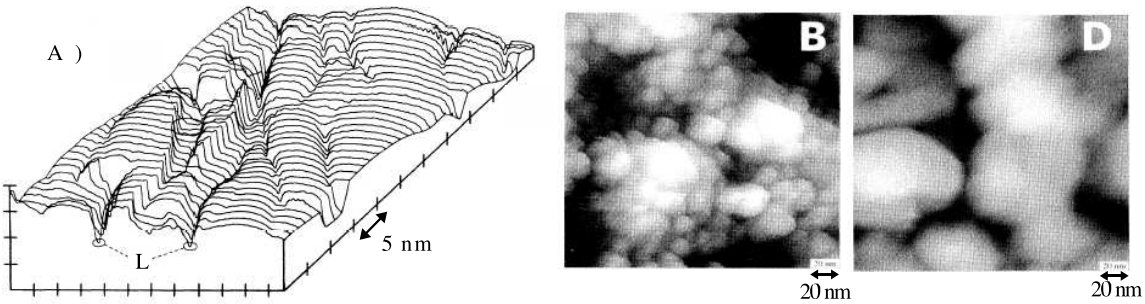


FIG. 8.3 – A) Image STM d'une surface d'argent initialement déposée à froid [14], puis réchauffée (sous traitement de pyridine) à 300K. La lettre L désigne des cannaux étroits où la reproduction topographique est limitée par la pénétration de la pointe. B) Image STM d'une surface d'argent déposée et imagée à 100K [15] ($200nm^2$ de surface imagée). Les plus petits granules ont une taille de 5 à 30 nm environ. D) Image STM d'une surface d'argent déposée et imagée à 300K [15]. Les motifs font cette fois 50 à 100nm environ.

L'un des relevés fut obtenu par Gimzewski *et al* [14] en 1985, et fait état d'un profil de surface présentant des craquelures de forme longilignes, larges de seulement quelques nm (plus profondes que larges), et espacées de 200Å en moyenne. Entre ces canaux, la surface se révèle relativement plane.[2].

L'autre relevé topographique, plus fiable (car obtenu $in-situ$ dans l'ultra-vide), fut obtenu par Douketis *et al* [15] en 1995, et révèle le caractère fractal du film froid, avec une structure superficielle plutôt en forme de "chou-fleur".

Les profils de surface déduits de ces deux expériences ne sont pas vraiment en accord. Toutefois, on peut retenir qu'ils présentent des rugosités dont la taille caractéristique est très proche, de 5 à 30 nanomètres.

Optons donc, dans notre approche théorique de l'absorption anormale, pour un réseau simple en Argent de période $d = 30$nm, avec des cavités de largeur $w = 5$ nm (celles-ci sont vides). On en étudiera la réponse optique pour différentes profondeurs h. La région de transmission est également du même métal que le réseau, ce qui fait de notre système un modèle de surface métallique finement gravée. Les valeurs de la

[2]L'expérience de Gimzewski est discutable : pour la nécessité du relevé STM, à l'époque, le film devait être réchauffé. L'astuce consistait à déposer de la pyridine avant rechauffement : les molécules inscrustées dans les rugosités du film devaient bloquer la fermeture des défauts lors du réchauffement. Ainsi, le film gardait une empreinte structurelle que n'ont pas les films déposés à chaud.

constante relative ε_m sont prises dans le *Handbook* [16]. Quelques spectres de réponse en champ lointain, pour diverses profondeurs de cavité, et en incidence normale, sont figurés ci-dessous.

La Figure 8.4 montre les spectres de réflectivité du réseau d'Argent dans le visible, pour les profondeurs de cavités $h = 8, 15$ et 30nm. Ces spectres montrent sans ambiguité qu'un réseau métallique dont les motifs périodiques sont de taille largement sub-longueur d'onde ($\lambda \sim$ qques $100nm$) *présente bien une grande bande d'absorption dans le visible*. Ceci témoigne de résonances excitées par des longueurs d'onde beaucoup plus grandes que la profondeur des cavités.

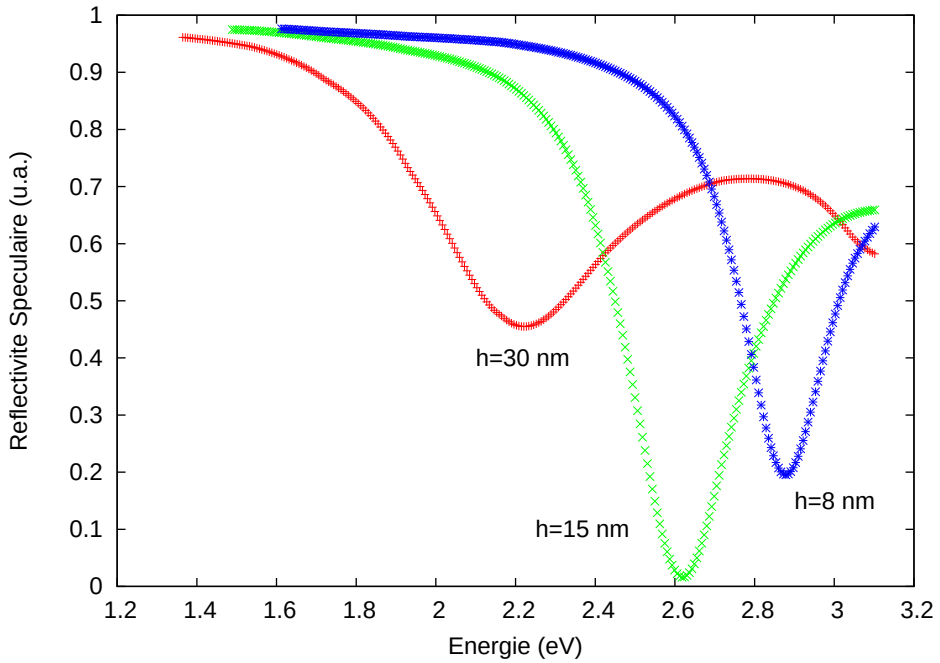


FIG. 8.4 – Spectres de Réflectivité d'un réseau de gravures fortement sub-longueur d'onde, en Argent, dans le visible ($\lambda : 1\mu m \rightarrow 400nm$), pour différentes profondeurs de cavité. Incidence normale. $d = 30$nm et $w = 5$nm. Calculs par la Méthode Modale Exacte avec 16 modes propres.

Si on compare maintenant ces simulations avec le spectre d'absorption du film froid en Argent présenté en Figure 8.1, le lien avec le phénomène d'AOA devient flagrant : on obtient pour les deux cas une bande d'absorption dans la même gamme d'énergie (autour de $2.5eV$), avec des largeurs spectrales du même ordre de grandeur ($\sim 1eV$). Remarquons du reste que le creux de réflectivité du réseau et celui de l'absorption du film froid ont une forme spectrale assez voisine.

Qu'en est-il maintenant des exaltations locales du champ électromagnétique ? La Figure 8.5 y répond.[3]

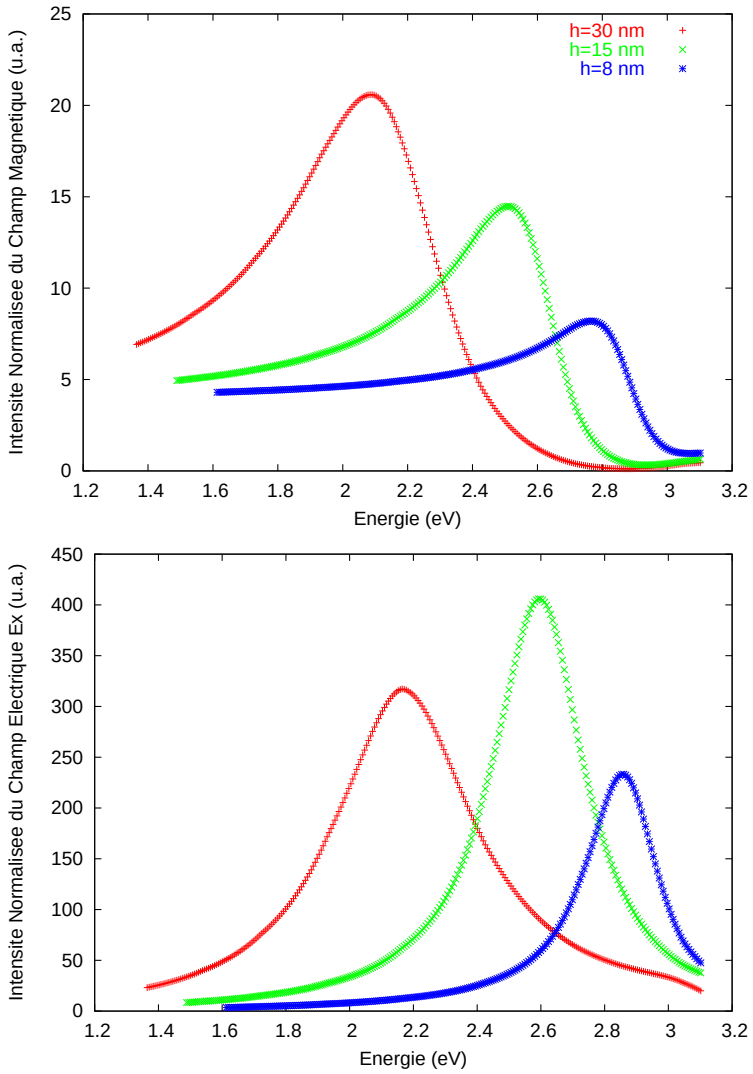


FIG. 8.5 – Spectres des intensité des champs magnétique (en haut) et électrique (en bas) pour différentes profondeurs de cavités ($\theta = 0$). Les intensités respectives sont normalisées par rapport aux champs incidents. Le champ magnétique H_z est, comme d'habitude, évalué au fond des fentes ($y = -h$) ; le champ électrique E_x est calculé juste en dessous de l'embouchure, en $y = -h/10$.

[3] *NB :* Le champ électrique E_x présente un désagrément dans son développement modal, à la résonance. Il peine à se "stabiliser" définitivement au niveau $y = 0$ des cavités, quand on change le nombre de modes propres. Or c'est la zone spatiale où il est justement maximum. Bien que continu en permanence, E_x est très sensible aux moindres variations du champ magnétique à cet endroit : chaque mode propre d'ordre supérieur est une onde surfacique prise en compte, d'où les variations (certes limitées) au niveau de l'embouchure quand on change le nombre de modes propres. J'ai donc calculé tous les spectres d'intensité du champ E_x de préférence en-dessous de l'embouchure de cavité, en $y = -h/10$. A cet endroit, les spectres sont toujours très bien stabilisés. Les facteurs d'exaltation annoncés seront donc calculés en $y = -h/10$ et seront suffisamment représentatifs des maxima obtenus.

On observe d'emblée que l'exaltation du champ électrique est beaucoup plus forte que celle du champ magnétique, et n'évolue pas de la même manière spectralement[4]. On marque là une différence par rapport aux géométries plus grandes, pour lesquelles ces deux grandeurs avaient des comportements et des maxima relativement similaires. Les pics de H_z et E_x ne se situent pas exactement aux mêmes fréquences ; c'est le champ électrique qui impose à la réflectivité le comportement essentiel (notamment le lieu et la profondeur du creux). Par conséquent, nous nous intéresserons principalement aux spectres d'exaltation du champ électrique, dans la miniaturisation des surfaces métalliques.

Comme la période n'est que de 30 nanomètres, *aucun plasmon de surface ne peut être excité sur l'interface horizontale du réseau*, dans le domaine visible, et ce, à quelque angle θ que ce soit (le plasmon usuel de l'argent se situant aux alentours des $3.65eV$ soit $29500cm^{-1}$). La cartographie spatiale du champ magnétique, Figure 8.6, montre clairement que ce sont exclusivement les cavités nanométriques qui résonnent, et révèle par la même occasion une pénétration notable du champ à l'intérieur du métal, le fond des fentes étant auréolé d'un lobe magnétique de 5 à 10 nm de rayon. Il n'y a rien en surface.

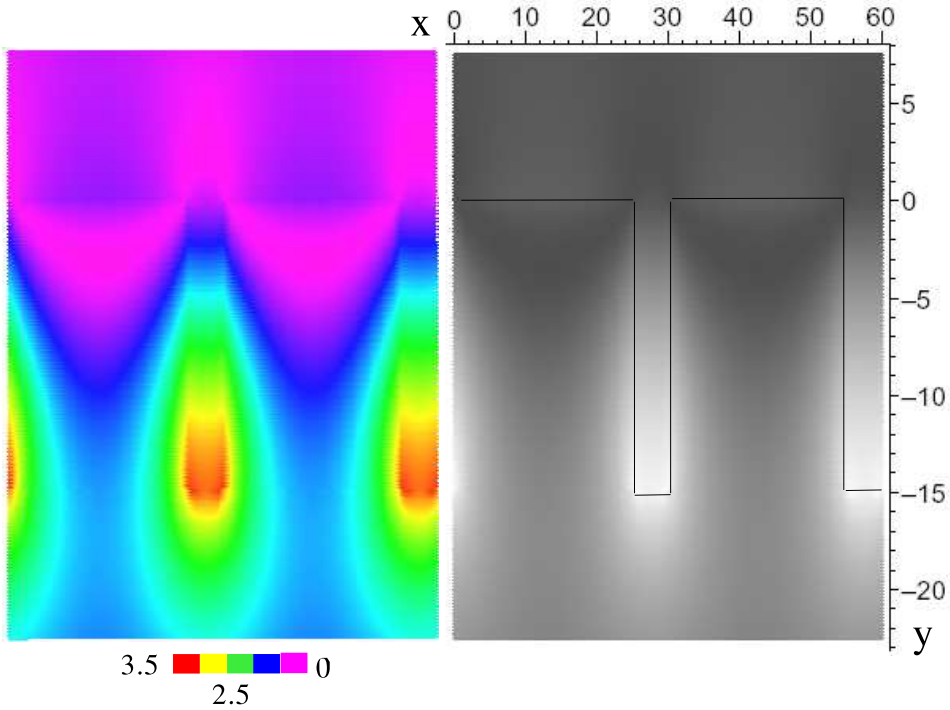


FIG. 8.6 – Cartographie spatiale du *module* du champ magnétique $|H_z(x,y)|$ (normalisé) pour $d = 30$nm, $w = 5$nm et $h = 15$nm, à la résonance ≈ 2.6eV ($21000cm^{-1}$, bleu). A gauche : vision en couleurs graduées. A droite : vision en contraste de luminosité. L'échelle spatiale est en nanomètres. La géométrie est mise en relief à droite, en traits pleins. Une vingtaine de modes propres de réseau ont été pris en compte pour la reconstruction modale du champ.

[4]Le spectre du champ H_z possède d'ailleurs un profil qui rappelle fortement un profil de Fano.

Tous ces résulats concordent donc avec les faits énoncés dans la partie introductive. Pour finir, on peut noter, dans notre exemple de simulation, l'existence d'une profondeur optimale ($h = 15$ nm) pour laquelle la réflectivité tombe littéralement à zéro (Figure 8.4). Cela veut donc dire que la *totalité* de l'énergie incidente est "pompée", et absorbée, dans les rainures. Par conséquent, bien que $w, h << \lambda$, on n'est pas en droit de considérer théoriquement que la lumière "ne voit pas" les perturbations géométriques du réseau (nano-sillons). A cause de leurs modes de résonance électromagnétique, les très petits défauts de surface peuvent avoir une influence macroscopique considérable sur les propriétés de reflexion des films métalliques rugueux.

8.2.2 Le couplage des plasmons de parois

Pour comprendre comment la résonance d'une cavité fortement sub-longueur d'onde est possible, il faut revenir aux interactions qui entrent en jeu au sein des motifs. Dans le Chapitre 2 (section 2.4), j'ai expliqué qu'au sein d'une cavité isolée, le mode fondamental est construit par le recouvrement des plasmons de surface des deux parois verticales (couplage "antisymétrique"), ce qui en fait un mode guide d'onde sans fréquence de coupure. Le vecteur d'onde $k_y = \Lambda_0$ de ce mode augmente avec la force du couplage, *i.e.* avec le rapprochement des parois, mais aussi avec la diminution du $|\varepsilon_m|$. Le fondamental étant seul propagatif dans une cavité sub-longueur d'onde, il est alors pratique de considérer le rapport normalisé Λ_0/k comme l'*indice effectif* de la cavité.

Si le métal est parfaitement conducteur, on a basiquement $n_{eff} = n_d$ quel que soit w, où n_d est l'indice optique du milieu remplissant la fente. Le métal réel, par contre, implique toujours $n_{eff} > n_d$, et plus la cavité est étroite, plus grand est n_{eff}. Cependant, l'indice effectif est indépendant de la profondeur h de cavité. La même chose a bien sûr lieu dans le cas du réseau de fentes, mais je complète davantage l'analyse en prenant en compte, maintenant, l'influence de la *périodicité*. On verra alors quelles sont les conséquences directes de cet indice sur la fréquence de la résonance Fabry-Perot et sur les exaltations locales du champ.

A) L'indice effectif de cavité

L'équation aux valeurs propres du réseau (à 1 fente par période) peut se factoriser, en incidence normale, en deux "sous-équations" transcendantes (voir page 138). Seule l'équation

$$\alpha\varepsilon_m \tan(\alpha w/2) + \beta\varepsilon_d \tan(\beta(d-w)/2) = 0 \tag{8.1}$$

donne le mode fondamental (*i.e.* la valeur propre Λ_0^2), lequel gouverne très largement le comportement du champ à l'intérieur des gravures sub-longueur d'onde. Nous ne nous intéressons qu'à lui.

Sauf choix extrême de paramètres opto-géométriques, la valeur propre Λ_0/k du mode fondamental est en général de l'ordre de l'unité, on l'a vu. $\alpha(\Lambda_0)$ est imaginaire, et dans le cas d'un bon métal ($Re(\varepsilon_m) << 0$), on peut approximer $\beta = \sqrt{k^2\varepsilon_m - \Lambda^2} \approx ik\sqrt{|\varepsilon_m|}$. Avec $w << \lambda$, l'équation (8.1) donne[5] :

[5]En considèrant $\alpha_0 w << 1$, ce qui suppose un couplage miminal des plasmons de parois.

$$(\frac{n_{eff}}{n_d})^2 \approx 1 + \frac{2}{kw\sqrt{|\varepsilon_m|}} \tanh(k\sqrt{|\varepsilon_m|}(d-w)/2) \tag{8.2}$$

Ce calcul [6] est valide tant que $(n_{eff})^2 \ll |\varepsilon_m|$.

Tant que $d \gg w$ (ce qui est toujours notre cas), le tanh dans (8.2) est proche de 1 car $\sqrt{|\varepsilon_m|}$ est grand. De ce fait, on obtient $\boxed{n_{eff} = n_d\sqrt{1 + \frac{2}{kw\sqrt{|\varepsilon_m|}}}}$: c'est la même formule que dans le cas d'une cavité unique (isolée), l'influence de la périodicité ne se faisant pas sentir. On voit donc clairement que l'indice effectif $n_{eff} \sim \frac{1}{\sqrt{kw}}$ et augmente avec l'étroitesse des cavités[7].

Par contre, quand la période d devient suffisamment petite (de l'ordre de l'épaisseur de peau), les résonances se modifient à cause du couplage des plasmons de parois à travers la strate métallique (tunneling). Comme on le voit dans l'équation (8.2), n_{eff} diminue quand la période d diminue.

Bilan : si à fréquence fixée, l'indice effectif augmente quand w diminue, il *diminue* quand la période d diminue. C'est ce qui expliquera, dans la discussion à venir, pourquoi il est préférable de travailler avec des grandes périodes.

La Figure 8.7 illustre les courbes de valeurs de n_{eff} dans le proche infrarouge et le visible, pour divers jeux de paramètres (w, d). Il s'agit des courbes de dispersion du plasmon de paroi, à ceci près que le vecteur d'onde, en abscisse, est normalisé.[8]

1. De manière générale, l'indice effectif augmente quand la fréquence augmente, car la constante du métal ε_m diminue en module ($n_{eff} \sim \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_m}}$).
2. A période constante (prendre le cas $d = 100nm$), le rapprochement des parois verticales (passage de $w = 50$nm à $w = 5$nm) "plie" la courbe vers les grands indices.
3. A largeur w constante, l'indice est globalement plus fort pour les grandes périodes. Au-dessus d'une certaine valeur de d, cependant, l'indice est stabilisé (cela vient du fait qu'il n'y a plus couplage entre les cavités à travers le métal du réseau).

[6] On peut tout aussi bien partir de l'équation aux valeurs propres globale en posant

$$1 - [\frac{\alpha^2\varepsilon_m^2 + \varepsilon_d^2\beta^2}{2\alpha\varepsilon_d\beta\varepsilon_m}] \tan(\alpha w)\tan(\beta(d-w)) = \frac{\cos(k_0 d\sin(\theta)}{\cos(\alpha w)\cos(\beta(d-w)))}$$

le membre de droite étant alors quasiment nul pour $\varepsilon_m << 0$, quel que soit θ (sauf si $d \sim w$).)

[7] Des parois verticales parfaitement réflectrices n'intègre pas l'existence potentielle du plasmon/guide d'onde de grand k_y, d'où la limite majeure de la méthode restreinte par rapport à la MME ici.

[8] La pente de la courbe $1/\lambda = f(n_{eff}) = f(\Lambda_0/k)$ est plus faible aux hautes fréquences, ce qui traduit une *baisse de la vitesse de groupe* $\frac{d\omega}{d\Lambda}$ suivant y du plasmon couplé. En découlent des fluctuations très localisées du plasma électronique et une forte concentration du champ aux interfaces air/métal.

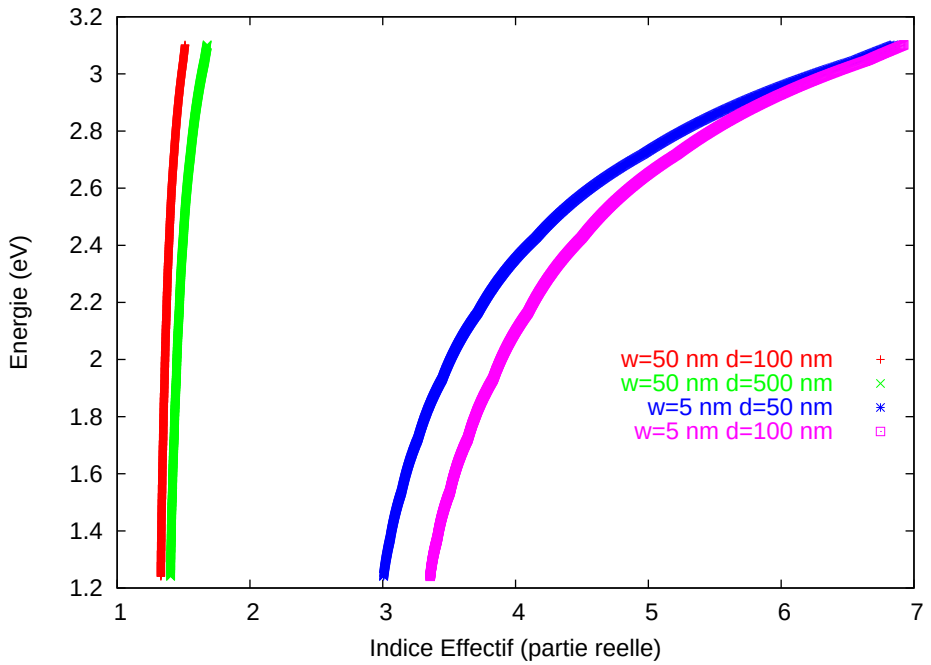


FIG. 8.7 – (couleurs) Variations de l'indice effectif $n_{eff} = \Lambda_0/k$ dans le domaine visible, pour un réseau simple en Argent, en fonction de divers jeux de paramètres géométriques (w, d) (calcul exact). Seule la partie réelle n_{eff} est représentée (la partie imaginaire, issue du caractère complexe de ε_m, étant beaucoup plus faible ici - $\Im(n_{eff})/\Re(n_{eff}) \approx$ qques %).

4. Enfin, à rapport w/d constant (prendre le cas $w/d = 1/10$), l'indice est plus grand pour les plus petites dimensions géométriques.

Pour modifier franchement la courbe de dispersion des plasmons de parois (*i.e.* l'indice effectif), il faut aller chercher des cavités de taille fortement sub-longueur d'onde (nous pousserons plus tard jusqu'à l'étude de fentes larges de 10 Å). Les parois verticales des cavités peuvent donc supporter des plasmons de surface de nature bien différente de ceux qu'on rencontre sur les surfaces horizontales.

En conclusion de ce paragraphe, n_{eff} devient grand quand les dimensions deviennent nanométriques. Ainsi, à énergie *constante*, on peut aller exciter efficacement des plasmons de parois dont le vecteur de propagation est de plus en plus grand.

B) Conséquence sur la fréquence de résonance Fabry-Perot

Si la résonance du mode de guide d'onde est possible dans le visible, pour de très petites profondeurs de cavité, c'est dû au fait que l'indice effectif n_{eff}, est devenu **très** supérieur à celui du diélectrique qui remplit la fente (à celui de l'air, en l'occurrence). La résonance de type Fabry-Perot, vérifiant "habituellement" la relation $kh \approx \pi/2$, aura désormais lieu quand $\boxed{khn_{eff} \approx \pi/2}$: *plus n_{eff} augmente, plus la profondeur h doit être faible afin de conserver une telle résonance dans le domaine spectral voulu* (les choses vont donc dans le "bon" sens).

Preuve analytique : je démontre (voir Annexe, page 244) qu'en se restreignant au mode fondamental, les amplitudes a_0 et b_0 du champ dans le réseau (avec $d << \lambda$) ont un déterminant donné par

$$\cot(n_{eff}kh) - [\frac{n_{eff}kw}{\pi\varepsilon_d}(3/2 - \ln(\frac{2\pi w}{d}))] - i \cdot \frac{n_{eff}w}{d\varepsilon_d}$$

L'annulation de la partie réelle donne la condition de résonance des cavités :

$$n_{eff}kh = \frac{\pi}{2} - Arc\tan[\frac{n_{eff}kw}{\pi\varepsilon_d}(3/2 - \ln(\frac{2\pi w}{d}))]$$

soit

$$k \approx k_0[1 - \frac{w}{\pi h\varepsilon_d}(3/2 - \ln(\frac{2\pi w}{d}))] \quad \text{avec } k_0 = \frac{\pi}{2n_{eff}h}$$

Donc pour un rapport d'aspect w/h assez fort ($w/h << 1$), la fréquence de résonance est bien renseignée par $khn_{eff} \approx \frac{\pi}{2}$. Ici, n_{eff} dépend implicitement de λ. Dans le cas où ε_m est assez négative, et $w << d$, on peut reprendre la formule de l'indice effectif d'une cavité unique. La condition de résonance conduit alors (*cf* page 245 de l'Annexe) à

$$k_{res} \approx \frac{\pi}{2n_d h} - \frac{1}{w\sqrt{|\varepsilon_m|}}$$

C'est le résultat que j'avais annoncé en section 3.4.1-E. On avait vu, en outre, que si les parois étaient considérées *parfaitement conductrices* ($n_{eff} = n_d$ quel que soit w), la fréquence de résonance était conditionnée par des facteurs purement géométriques :

$$k \approx \frac{\pi}{2n_d h} - O(w/h)$$

Le décalage $O(w/h)$, lié à l'effet d'ouverture s'estompait lorsque w tendait vers 0 et la fréquence se calait sur la fréquence Fabry-Perot exacte ($\frac{1}{\lambda} = \frac{1}{4h}$), tandis que l'exaltation du champ tendait singulièrement vers l'infini. On voit donc qu'aux échelles géométriques de l'ordre de la profondeur de peau du métal, ce comportement n'a plus rien à voir avec le décalage réel : on passe d'une dépendance en w à une dépendance en $1/w$.

On a désormais tous les éléments pour comprendre la progression qui se fait en rapprochant les parois délimitant la cavité : partant d'une largeur de fente "modérément" sub-longueur d'onde, c'est l'effet géométrique qui va d'abord jouer (tendance du "métal parfait"), donc entraîner un décalage (de la résonance) vers les **hautes** fréquences. Mais en dessous d'un certain seuil de w, c'est le coulage fort des plasmons de surface qui va l'emporter, et **retourner** la situation : l'augmentation spontanée de l'indice effectif entraîne dès lors un décalage vers les **basses** fréquences, décalage qui d'ailleurs peut être très grand.

En conclusion de ce paragraphe, nous avons compris que les longueurs d'onde d'excitation des résonances pouvaient être beaucoup plus grandes que la hauteur h des cavités. Cela explique bien pourquoi on observe dans nos spectres, une absorption optique anormale aux alentours des $2.5eV$, alors que $h \sim 10nm$.

C) Conséquence sur les nouvelles amplitudes de résonance

Autour du mode Fabry-Perot, si la condition $k_{res} \approx \frac{\pi}{2n_{eff}h}$ est bien vérifiée, on a $\cot(n_{eff}kh) \approx -n_{eff}h(k_{res}-k)$. Par conséquent, toujours dans le cadre de l'approximation unimodale, les coefficients pondérant le mode fondamental sont tels que $a_0 = -b_0$ (voir Annexe, page 244), avec :

$$a_0 \approx \frac{1}{n_{eff}h} \cdot \frac{1}{k_{res} - k - i\frac{w}{\varepsilon_d hd}}$$

Et, dans les cavités, $\boxed{H_z^{II}(y=-h) \sim 2a_0}$ et $\boxed{E_x^{II}(y=0) \sim n_{eff} \cdot 2a_0}$

ε_m (donc n_{eff}) est supposée réelle dans ce calcul. Ainsi, l'amplitude de la résonance est *approximativement* bornée par la quantité $\boxed{n_{eff}\frac{w}{d\cdot\varepsilon_d}}$ pour H_z, et $\boxed{\frac{w}{d\cdot\varepsilon_d}}$ pour E_x, d'où une exaltation des champs plus prononcée pour un ratio $w/d << 1$ ([9]).

Il faut cependant souligner que l'augmentation de n_{eff} va dans le sens d'une *plus faible exaltation pour le champ magnétique* : c'est le caractère électrique de la résonance qui prédomine. En effet, nous excitons ici des plasmons de parois ayant un *grand vecteur d'onde* k_y, d'où le changement de nature de la résonance : ce n'est plus vraiment de la lumière qui est confinée au sein des cavités, mais un champ davantage "électronique".

L'exaltation de l'intensité du champ électrique dans ces petites cavités est finalement du même ordre $\sim \frac{1}{(w/d)^2}$ que dans les cavités traitées avec des parois parfaitement conductrices. Cependant, du fait qu'ici $w/d \sim 0.01$ (voire plus petits, dans ce Chapitre), cela conduit à des exaltations géantes.

Pourquoi une telle intensité du champ électrique ? Dans une cavité fortement sub-longueur d'onde, les constantes de propagation du plasmon de surface changent radicalement par rapport à l'extérieur, on l'a vu. En entrant dans la rainure, on a une croissance brutale du vecteur d'onde k_y (et, si on veut, un ralentissement net de la vitesse de la lumière, alors combinée au plasma sous forme de polaritons). La résonance des ondes stationnaires supportées par le mode guidé, s'accompagne d'une forte localisation des charges aux bords des ouvertures de cavité, avec un signe opposé d'une paroi à l'autre[10]. Par conséquent, *étant donné la largeur très sub-longueur d'onde de l'embouchure, on a l'apparition d'un gradient de potentiel particulièrement fort à cet endroit.* Or E_x dérive justement de ce gradient.

[9] On a donc intérêt à prendre d grand devant w. Par contre, il semble que la largeur spectrale de la résonance ne soit pas très influencée par n_{eff}.

En complément : l'analyse du rapport n_{eff}/ε_d montre que lorsque l'indice diélectrique interne aux cavités $n_d > 1$, la fréquence de résonance est divisée par n_d, l'intensité des champs est multipliée par n_d^2 et la largeur spectrale sensiblement réduite. C'est une tendance, bien sûr, il faudrait tenir compte des autres modes propres et de l'absorption du métal pour savoir ce qu'il en est au final. *Remplir les fentes d'un diélectrique conduit globalement à de plus fortes exaltations, de meilleure qualité.* Il faut y voir l'influence du *contraste* des contantes diélectriques. Si on se rappelle l'analogie entre le modèle de Kronig-Penney pour les électrons, et le cas du réseau de diffraction pour les photons en Polarisation TE, on peut percevoir les cavités d'indice $n_d >> 1$ comme de bons "attracteurs" de lumière.

[10] La *capacité* de la cavité, perçue comme un condensateur, est plus grande aux petits w.

D) Rôle de l'absorption du métal

Il nous reste maintenant à mettre en exergue l'effet de l'absorption métallique dans notre étude analytique (en dehors de l'absorption due à la diffusion des ondes d'interface horizontale du système). Sans elle, nous ne verrions pas de creux dans la réflectivité spéculaire du réseau, au moment des exaltations locales. Reconsidérons le dénominateur du coefficient a_0, approximé sous la forme établie plus haut :

$$a_0^{-1} \sim \cot(n_{eff}kh) - \frac{n_{eff}}{\varepsilon_d}\frac{kw}{\pi}[\ln(2\pi\frac{w}{d}) - \frac{3}{2}] - i\frac{n_{eff}w}{d \cdot \varepsilon_d}$$

On peut montrer que si $|\Re(\varepsilon_m)| >> \Im(\varepsilon_m)$, alors $n_{eff} = n_0 + in_1$, avec $n_1 << n_0$. Un développement limité simple autour de $n_0kh \approx \pi/2$, conduit alors à isoler la partie imaginaire totale du déterminant de a_0 (partie qui borne l'amplitude de résonance) :

$$-\frac{n_0w}{d \cdot \varepsilon_d} - n_1 \cdot [kh + \frac{1}{\varepsilon_d}\frac{kw}{\pi}(\frac{3}{2} - \ln(2\pi\frac{w}{d}))]$$

On voit apparaître explicitement l'influence de n_1, *i.e.* de l'absorption du matériau. n_{eff} développe en réalité une partie imaginaire qui est d'autant plus importante que le rapport $\Re(\varepsilon_m)/\Im(\varepsilon_m)$ est petit. Cela pourrait expliquer que certains métaux ne soient pas "SERS-actifs" aux hautes fréquences ; ou encore qu'il existe une profondeur h optimale de résonance (l'augmentation de n_{eff}, quand on monte en fréquence, conduit à de plus fortes exaltations, jusqu'au moment où la partie imaginaire de l'indice effectif deviendrait trop importante).

D'autre part, l'absorption, via n_1, aura un impact négligeable sur une résonance déjà large en soi, mais pas sur une résonance struturellement[11] fine. C'est pourquoi, dans le visible, on ne verra généralement pas de résonances piquées comme celles qu'on peut observer dans l'infra-rouge, sur les réseaux à plusieurs fentes par période (Partie II).

E) Conclusion

Les microcristaux métalliques (dont la taille est typiquement de quelques dizaines de nanomètres) présentent entre eux des joints de grains pouvant être le siège de plasmons de parois couplés. Les constantes de propagation de ces plasmons sont sensibles à l'étroitesse des interstices (et à la constante diélectrique). Dans le cas des sillons rectangulaires du réseau périodique, le plasmon couplé antisymétrique forme un guide d'onde unique dont le vecteur k_y augmente avec la diminution de la largeur w. Cela revient à dire que le milieu interne à la cavité développe un indice effectif n_{eff} de plus en plus positif (avec une certaine partie imaginaire due à l'absorption). La période d du réseau doit être préférentiellement grande, et le métal noble (peu absorbant), comme l'argent. La résonance fondamentale de type Fabry-Perot, supportée par le mode fondamental, apparaît alors quand $khn_{eff} = \pi/2$, ce qui explique la possibilité de son existence dans des cavités de profondeur fortement sub-longueur d'onde, dans un domaine spectral

[11] Ce que j'appelle la finesse "structurelle" est celle qu'on calcule quand on prend le métal parfait, et qui ne dépend que des paramètres géométriques.

(le visible) où elles n'auraient pas lieu si on ne tenait pas compte du couplage réel des plamons de parois. A la résonance, le champ *électrique* est fortement exalté au niveau des embouchures de fente, du fait d'un puissant gradient de potentiel entre les parois verticales (puisqu'elles ont des charges opposées et sont séparées d'une distance très sub-longueur d'onde). Ce phénomène s'accompagne d'une chute de la réflectivité parfois spectaculaire. L'absorption des métaux est un facteur limitant, surtout vers les hautes fréquences.

8.3 Discussion générale

L'absorption anormale des films froids semble trouver une bonne explication dans les phénomènes de résonances du type de celles rencontrées dans les réseaux de rainures sub-longueur d'onde. On peut néanmoins entamer une discussion plus approfondie sur l'influence des paramètres sur les exaltations locales du champ, ainsi que sur l'influence d'éventuels plasmons horizontaux de surface. La grandeur physique qui fait le lien entre le lieu de résonance Fabry-Perot, la force du couplage plasmonique interne à la cavité, et l'amplitude des exaltations, c'est notre indice effectif. En jouant sur lui, on peut démontrer deux choses :

- En partant d'une certaine géométrie sub-longueur d'onde, il est possible d'en chercher une autre, *plus petite*, pour laquelle les cavités résonnent encore à la *même* fréquence. On verra cependant que les amplifications de champ sont totalement différentes.
- Maximiser l'indice effectif accroît, indirectement, l'amplitude du champ électrique (si résonance il y a) : pour ce faire, on a intérêt à considérer des réseaux de cavités très sub-longueur d'onde, dont la période d est *grande* devant w.

Ce sont ces deux points qui structurent notre discussion.

8.3.1 Effet du couple (w, h) sur la résonance

Cette section a pour but de montrer qu'il est possible de réduire la taille des résonateurs de cavité *sans changer* la fréquence de résonance. Pour cela, il faut travailler *grosso modo* à $n_{eff}h$ fixé. Etant donné que $n_{eff} \sim \frac{1}{\sqrt{kw}}$, on constate d'emblée qu'*il n'est pas possible de réduire w et h proportionnellement* : si on veut réduire la profondeur d'un certain facteur, il faut réduire w d'un facteur bien plus grand ; par conséquent, on peut vite arriver à des rapports d'aspect extravagants. C'est en cela que la recherche de possibles résonances Fabry-Perot dans des cavités miniatures, et dans le domaine spectral qui nous intéresse (visible), ne doit pas passer par des choix d'échelles arbitraires. La question sera ensuite de savoir ce que deviennent les amplitudes de résonance des champs magnétiques et électriques au fur et à mesure qu'on avance dans cette miniaturisation contrôlée. C'est tout le propos des travaux qui vont suivre. Nous tendrons, en dernière section du Chapitre, vers des rugosités de surface d'échelle quasiment angstrométrique et montrerons qu'elles s'accompagnent de résonances exceptionelles.

Avant cela, *démontrons que 2 fentes métalliques isolées, dont les sections rectangulaires sont très différentes, peuvent tout à fait résonner à la même fréquence* (sans faire intervenir le rôle d'harmoniques d'ordre supérieur). En jouant continûment sur la distance w séparant les parois verticales, on joue continûment sur l'indice effectif de la cavité, de sorte qu'il suffit d'ajuster la profondeur h pour conserver inchangé le lieu de la résonance du mode Fabry-Perot. Les spectres qui suivent permettent de visualiser clairement comment les réponses évoluent, par modification des dimensions géométriques.

On considère un réseau d'argent de période fixée $d = 300$ nm. L'étude se fait dans le visible, en incidence propagative normale (aucun Plasmon Horizontal excité).

- Partant d'une cavité paramétrée par $h = 30$ nm et $w = 30$ nm, le fait de réduire la largeur à 5 nm augmente l'indice effectif du mode fondamental et décale, comme attendu, le lieu de la résonance vers les bas nombres d'onde (on passe du bleu au rouge).

- Si, au contraire, on ne touchait pas à w, il faudrait augmenter la profondeur h jusqu'à environ $70nm$ pour avoir la résonance dans la même zone rouge.

La Figure 8.8 montre l'évolution de ce raisonnement. On a donc obtenu directement deux géométries distinctes résonnant toutes les deux à la même fréquence.

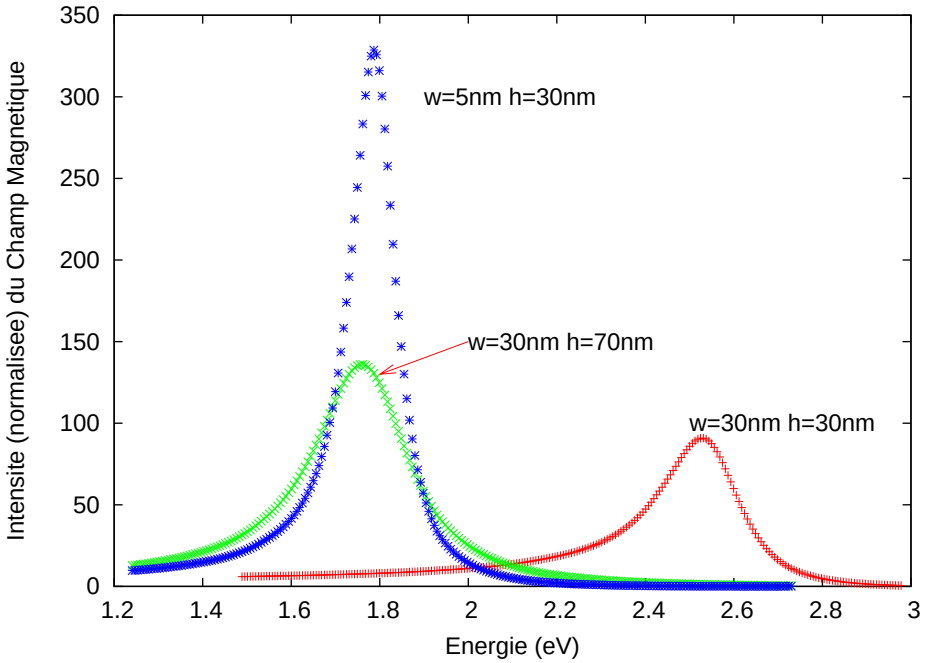


FIG. 8.8 – Spectres de l'intensité (normalisée) du champ magnétique dans un réseau en Argent, en incidence normale ($\theta = 0$), pour différentes dimensions de cavités, à période constante ($d = 300nm$). Le réseau de gravures ($w = 30, h = 70nm$) et celui de gravures ($w = 5, h = 30nm$) résonnent presque à la même fréquence. Calculs effectués avec 16 valeurs propres.

Qui plus est, les amplitudes de résonance de chaque cavité sont loin d'être identiques : ici *la géométrie la plus petite résonne mieux*. Du côté des champs *électriques*, les comparaisons sont encore plus éloquentes (spectres non figurés ici) : alors que l'intensité normalisée de E_x tourne autour de **350** pour $w = 30$ nm (et ce, pour les deux profondeurs h de notre exemple), elle avoisine les **5400** quand on prend $w = 5$ nm, ce qui est logique puisque le rapport w/d a chuté d'un facteur six [12].

[12]Cependant, le creux de réflectivité est maximal pour le jeu ($w = 30$,$h = 30$) : il tombe carrément à 0, alors qu'on a une réflectivité minimale de 9% pour le jeu ($w = 5$,$h = 30$). La cavité la plus grande est le siège d'une moins grande exaltation mais, en volume, stocke (absorbe) probablement autant d'énergie que la plus petite. C'est la densité d'énergie qui change.

On comprend en fait qu'il existe théoriquement une *infinité* de jeux (w, h) conduisant à un même lieu de résonance. Le tout est de savoir avec quels rapports d'aspects on souhaite travailler... Si, à profondeur h fixée, la diminution de w entraîne un décalage de la résonance de cavité vers les *basses* énergies, la réduction proportionnelle de w et de h ne conserve pas le lieu de la résonance, mais entraîne un décalage vers les *hautes* fréquences, donc vers un domaine où l'absorption (croissante) finit par faire s'effondrer la résonance. La variation de h a toujours un impact prépondérant comparé à celle de la largeur w. Cette tendance va dans le bon sens : le réchauffement des films froids entraîne une plus grande mobilité des atomes déposés en surface, d'où une réduction des défauts et une réduction de l'espace entre les joints de grain (formation de joints compacts). L'applanissement du profil de surface peut expliquer ainsi la disparition conjointe de l'AOA, et du SERS [11] par augmentation de la température.

8.3.2 Effet de la période sur l'amplitude des exaltations

A) De l'importance d'une grande période

D'après la discussion détaillée sur l'indice effectif en page 196, le fait de prendre un grand d a l'intérêt d'*améliorer le facteur de qualité* de la résonance Fabry-Perot. En référence aux expériences SERS, on pourra comprendre que les meilleures exaltations du champ électromagnétique ne sont pas nécessairement obtenues en densifiant les "sites actifs" (*i.e.* le nombre de cavité par micron, dans le cas du réseau).

Pour illustrer clairement ce point, nous allons comparer les réponses optiques du réseau d'Argent ($w = 5nm, d = 30nm$), déjà montrées en Figures 8.4 et 8.5 (on l'appellera réseau **A**), avec celle du réseau ($w = 5nm, d = 300nm$), appelé réseau **B** (période 10 fois plus grande), et ce, pour différentes profondeurs h. La réponse du dernier système, en incidence normale, est représentée[13] en Figure 8.9.

Les longueurs d'onde d'excitation sont de quelques centaines de nanomètres (visible). La Figure 8.9 montre des exaltations de l'intensité du champ E_x de plusieurs milliers. Evidemment, le jeu de paramètres ($w = 5$ nm,$h = 45$ nm) correspond à un rapport d'aspect des fentes sans doute difficile à obtenir avec les technologies actuelles, mais il permet néanmoins de voir qu'on a encore une profondeur h optimale de résonance (plus grande que dans le cas $d = 30$ nm), et correspondant à une fréquence située dans le proche infra-rouge (la réflectivité tombe à 0). Cet exemple peut être mis en parallèle avec le cas d'une surface métallique présentant des fissures profondes.

[13] La simulation a nécessité de travailler avec un plus grand nombre de modes propres (d'ondes de surface), puisque la partie métallique occupe nettement plus d'espace. En incidence normale, dans le visible, nous n'aurons toujours pas de plasmons horizontaux en jeu. La courbe représentant l'équation aux valeurs propres a le bon goût d'être régulièrement oscillante dans tout le visible, avec des racines toujours bien séparées. Leur détection est donc très aisée et l'on peut en caluler un nombre conséquent (32 valeurs tous les 10 cm^{-1} ici).

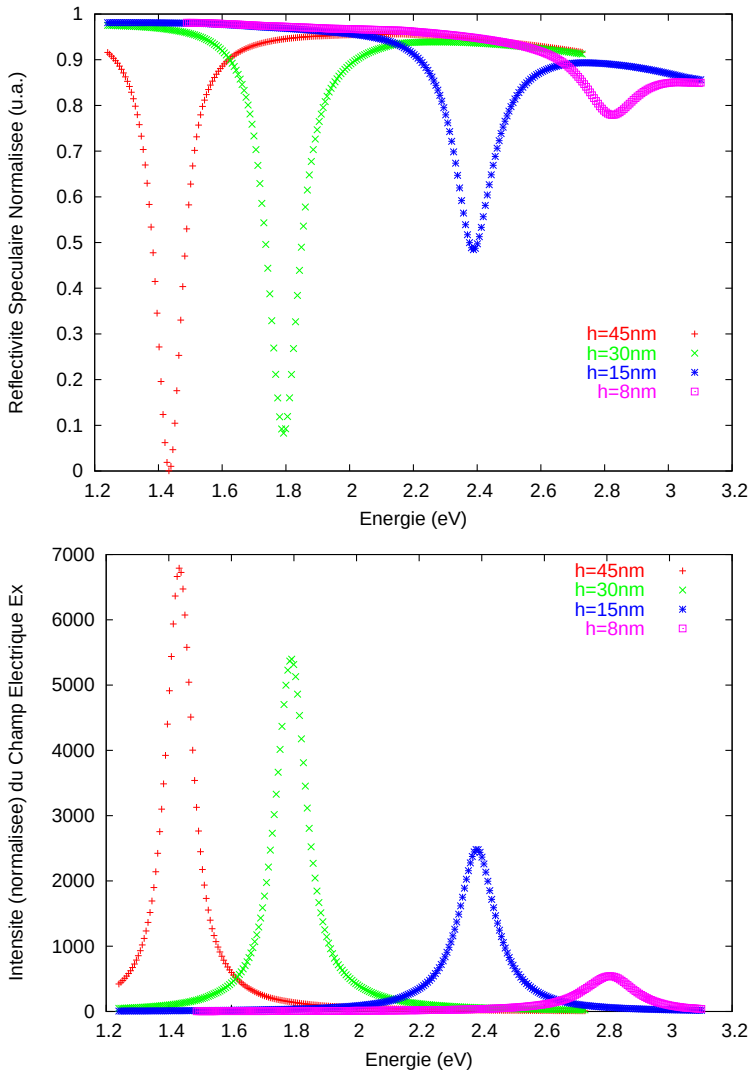


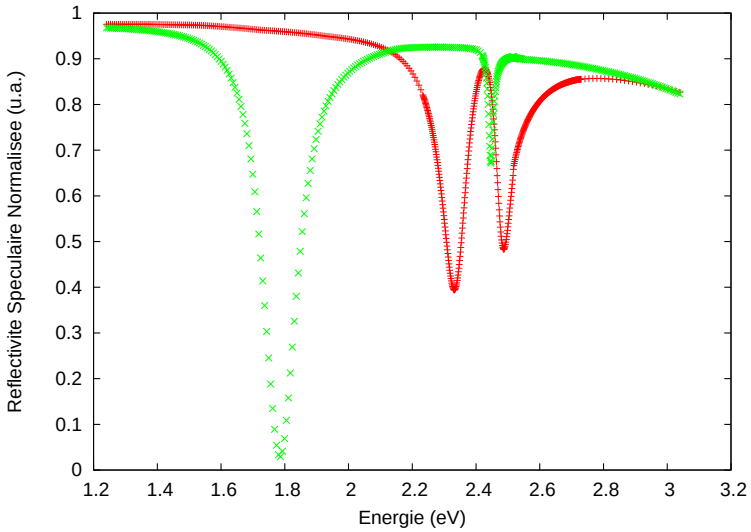
FIG. 8.9 – Spectres de la Réflectivité Spéculaire (en haut) et de l'intensité du champ électrique (en bas) pour un réseau en Argent, avec $w = 5nm$ et une période $d = 300nm$, selon différentes profondeurs de cavités ($\theta = 0$). On rappelle que E_x est normalisé par rapport au champ électrique total incident. Il est calculé juste en dessous de l'embouchure, en $y = -h/10$.

Si on compare notamment les exaltations du champ électrique des réseaux A et B pour les profondeurs $h = 15$ ou 30 nm, on voit que le réseau B, à seulement 3 cavités par micron, présente des intensités 10 fois plus importantes que le réseau A qui a 33 cavités par micron, avec en outre des résonances de plus petites largeurs spectrales.

B) Rôle des plasmons horizontaux

On peut très légitimement se demander ce qu'il se passe si l'on fait intervenir, en plus, des plasmons de surface au niveau des interfaces horizontales (*Horizontal Surface Plasmons*). Reprenons l'exemple précédent. Avec une période de 300 nanomètres, il est possible, en incidence oblique, d'exciter un HSP dans le domaine visible.

Ce qu'on obtient pour un angle $\theta = 40^o$ est montré en Figure 8.10.



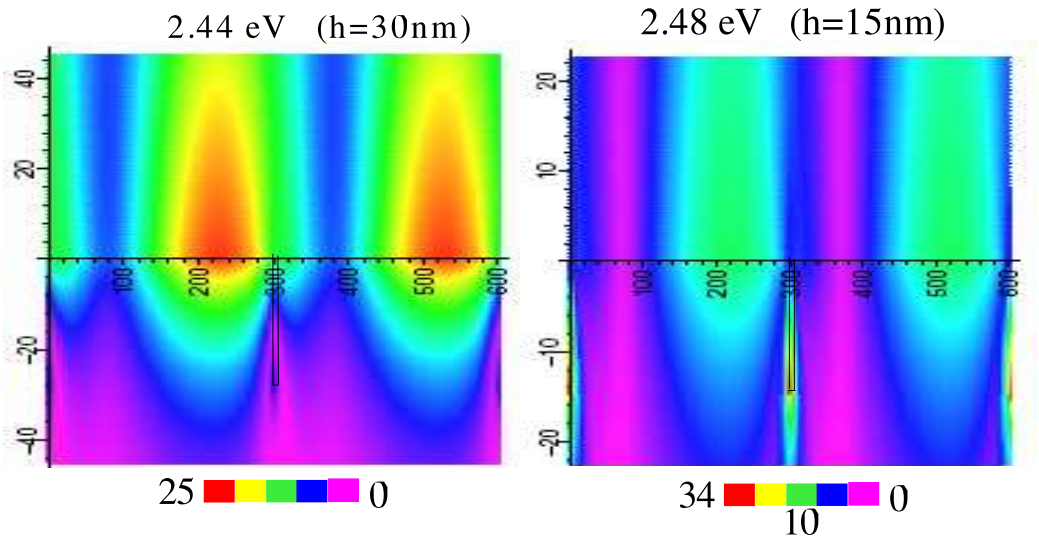


FIG. 8.10 – Excitation du réseau d'argent paramétré par $(w = 5nm, d = 300nm)$ avec un angle $\theta = 40$ degrés, pour 2 profondeurs $h = 15$ et $30nm$. **En haut :** Spectre de réflectivité spéculaire pour $h = 30$nm (en vert) et $h = 15nm$ (en rouge). **En bas :** A gauche : Cartographie, sur 2 périodes consécutives, du *module* du champ magnétique à 2.44eV (19720 cm^{-1}) quand $h = 30$ nm : résonance HSP pure. Le profil de cavité est signalé en trait fin noir. Les échelles spatiales sont indiquées en nanomètres. A droite : cartographie, sur 2 périodes consécutives, du *module* de H_z à 2.48eV (20030cm^{-1}) quand $h = 15$nm : résonance hybride HSP/Fabry-Perot (*N.B.* : vers 2.3eV, on a une distribution de l'intensité similaire, le plasmon hybride horizontal étant, cette fois, centré sur la "gauche" du motif périodique). Pour information, 32 modes propres ont été pris en compte.

Pour $h = 30$ nm, les résonances HSP et Fabry-Perot sont bien séparées. Pour $h = 15$ nm, les résonances HSP et Fabry-Perot sont couplées, entraînant des distributions spatiales du champ plus complexes, mais pas de meilleures exaltations des intensités. Les simulations montrent que les nouvelles localisations de la lumière (en surface et/ou dans les cavités) *ne sont manifestement pas plus fortes* que celles obtenues en incidence normale (en l'absence de HSP). Dans le cas où $h = 15$ nm, les résonances de cavité et du HSP ont tendance à se perturber à la défaveur du dernier. On remarquera aussi que le mode de cavité résonne un peu moins en incidence oblique. Prenant acte de cette observation, nous persisterons préférentiellement en incidence normale dans la suite du Chapitre.

En conclusion : une grande période devant w, oui, mais pas trop, pour ne pas faire intervenir les plasmons de surface horizontaux dans la zone de résonance Fabry-Perot.

8.3.3 Résonateur nanométrique : exaltations extrêmes

Indice effectif extraordinaire

Pris par le jeu de la miniaturisation, et dans l'optique de s'approcher autant que possible d'une surface de faible rugosité, j'ai poussé l'étude jusqu'au cas d'un réseau de gravures larges de $w = 10$Å. On touche là aux échelles ultimes (le rayon atomique de l'Argent est de 1.5Å environ). La période étant, dans cet exemple, 200 fois plus grande que la largeur des cavités, on a presque affaire à une collection de cavités individuelles.

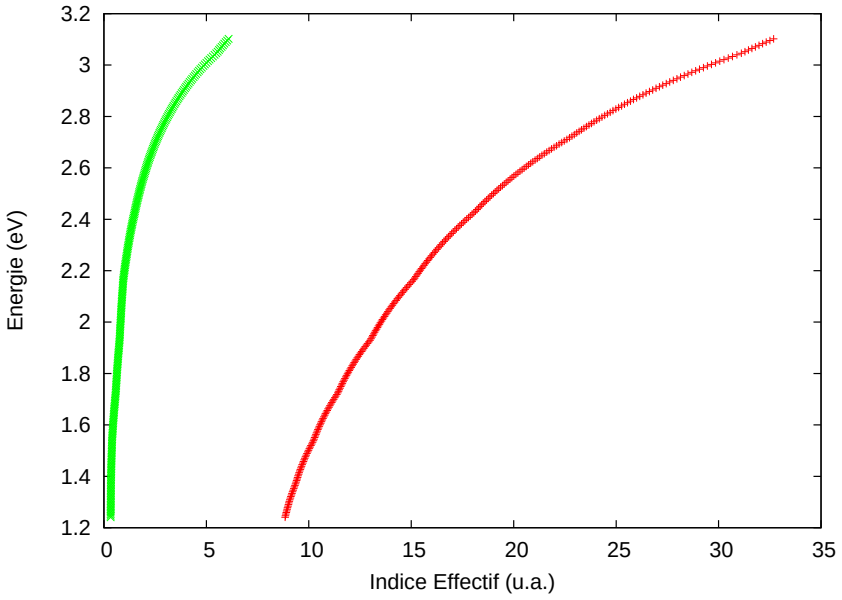


FIG. 8.11 – Variations, dans le domaine visible, de l'indice effectif (complexe) n_{eff} dans une cavité de largeur $w = 1$nm, au sein d'un réseau d'Argent de période $d = 200nm$ (cavité presque isolée). En *rouge* : partie réelle de l'indice effectif. En *vert* : sa partie imaginaire.

La courbe de dispersion de la Figure 8.11 révèle une valeur tout à fait spectaculaire de l'indice effectif du mode guidé (*i.e.* du vecteur d'onde k_y du plasmon de paroi) dans une cavité large de 1nm (10Å). L'indice est en effet de l'ordre de ***plusieurs dizaines***.

On notera en contrepartie que n_{eff} développe une partie imaginaire plus élevée aux hautes fréquences[14], terme qui contrecarrera certainement l'amplification des résonances dans cette zone spectrale (les métaux comme l'or sont trop absorbants dans le visible pour que les cavités nanométriques résonnent efficacement). Néanmoins, la longueur d'atténuation du plasmon de paroi, liée à la partie imaginaire de ε_m, restera bien plus grande que la profondeur des cavités, d'où la persistance des résonances Fabry-Perot.

Il faut également souligner que la formule de l'indice effectif (8.2), établie plus haut, n'est valable que tant que $n_{eff}^2 << |\varepsilon_m|$, ce qui n'est plus le cas ici : on est passé dans la gamme des $\vec{k}_y$ très supérieurs aux vecteurs d'onde $\vec{k}$ de la lumière, c'est-à-dire dans un *régime bien plus électrostatique qu'optique*. C'est le couplage extrême des plasmons de parois, au sein des nano-cavités, qui permet un tel changement de nature dans le domaine visible. Il faut alors reprendre l'équation aux valeurs propres (8.1) pour obtenir une *autre* formule analytique de n_{eff}.

Dans ce nouveau régime où $(\Lambda/k)^2 >> |\varepsilon_m|$, on a simultanément $\beta \approx \alpha \approx i\Lambda$ ([15]), si bien que l'équation 8.1, quand $d >> w$, se réduit simplement à :

$\tan(i\Lambda w/2) + i\frac{\varepsilon_d}{\varepsilon_m} = 0$, soit $\frac{\Lambda w}{2} \approx Arc\tanh(\frac{\varepsilon_d}{-\varepsilon_m})$.

Comme $|\varepsilon_d/\varepsilon_m| << 1$ ici, il vient directement : $\boxed{n_{eff} \approx \frac{2\varepsilon_d}{kw|\varepsilon_m(k)|}}$

Exemple avec $w = 1$nm : à $1.48eV$ ($12000cm^{-1}$), $\varepsilon_{Ag} \approx -31$ (en négligeant la partie imaginaire), donc $n_{eff} \approx 8.55$. La Figure 8.11 indique $n_{eff} = 10$ (exact). La formule approximée est donc en bon accord. On note que n_{eff}^2 est bien supérieur à $|\varepsilon_{Ag}|$.

Vers une Surface Faiblement Rugueuse

Une surface métallique rugueuse serait mieux représentée en prenant une modulation périodique de quelques nanomètres seulement. Considérons encore $w = 1nm$, et prenons plutôt $d = 30nm$. Les spectres de réponse du réseau d'Argent ayant ces paramètres sont insérés en Figure 8.12. Plusieurs profondeurs h, de seulement quelques nanomètres, servent à l'exemple.[16].

[14]Cela vient du fait que le rapport relatif $|\Im(\varepsilon_m)/\Re(\varepsilon_m)|$ augmente dans les hautes fréquences du visible (on rappelle que $n_{eff} \sim 1/\sqrt{\varepsilon_m}$ à paramètres géométriques fixés).

[15]L'approximation $\beta = \sqrt{k^2\varepsilon_m - \Lambda^2} \approx i\Lambda$, aux grands vecteurs d'onde k_y, traduit, pour le plasmon de paroi de la cavité, une **profondeur de pénétration** $\delta = 1/\Im(\beta)$ dans le métal, qui n'est plus "classique" (elle devient même très faible). Cette longueur caractéristique s'applique également à l'intérieur de la cavité puisque $\alpha \approx i\Lambda$. Cela dit, le *recouvrement* antisymétrique des plasmons est largement maintenu à cette échelle puisque $\alpha w << 1$.

[16]Le calcul a été effectué avec 32 modes propres (convergence atteinte). Les valeurs propres normalisées $(\Lambda/k)^2$, de rang 30, par exemple, sont de l'ordre de -10^5, d'où l'importance de chercher efficacement les racines de l'équation transcendante.

On fleurte ici avec les dimensions angstrométriques d'une rugosité de surface, et pourtant, d'intenses exaltations peuvent avoir lieu. L'exemple de la résonance, dans le bleu ($2.7eV$ ou $\lambda = 450$nm), du réseau dont les cavités sont de section transverse $1 \times 2\ nm^2$ est particulièrement étonnant. A cette énergie, $n_{eff} = 22.94 + i2.68$.

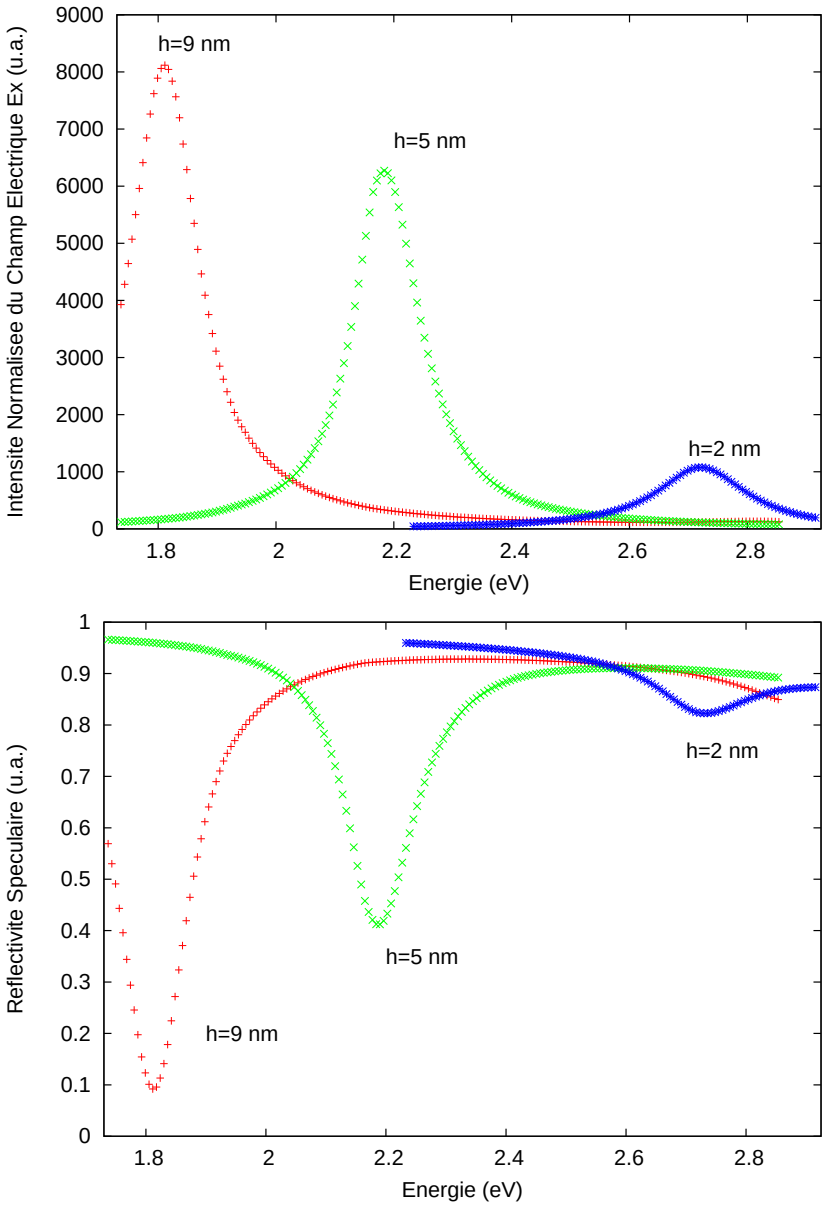


FIG. 8.12 – Spectres de l'intensité normalisée du champ électrique E_x (en haut) et de la réflectivité spéculaire (en bas) pour un réseau en Argent paramétré par $w = 10$Ået $d = 300$Å, en incidence normale, pour différentes profondeurs de cavités ($h = 2, 5$ et 9nm).

Dans les fentes, le champ magnétique est très faible (intensité de 4 seulement), tandis que le champ électrique a une intensité normalisée de l'ordre du millier et décroît très rapidement au sortir du résonateur de cavité. Les distributions des champs correspondant à cette géométrie, lors de la résonance, sont présentées en Figure 8.13.

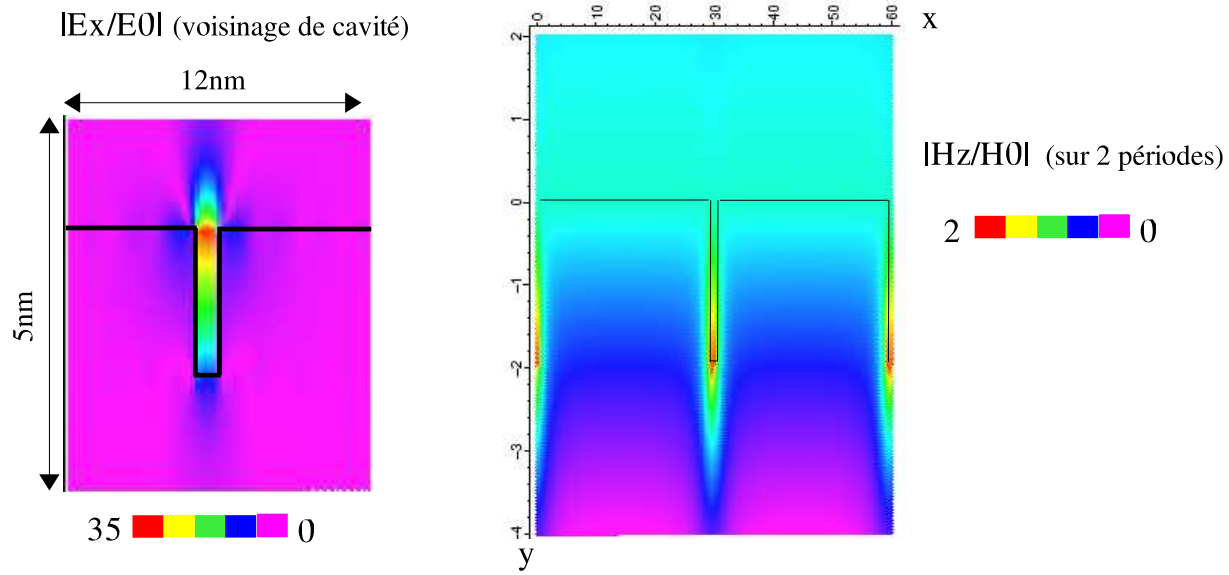


FIG. 8.13 – Cartographies spatiales des modules des champs E_x et H_z (normalisés) lors de la résonance Fabry-Perot à $2.7eV$ (ou 22000 cm^{-1}), pour le réseau $d = 30nm$, $w = 1nm$ et $h = 2nm$. $\theta = 0$. 36 modes propres de réseau ont été pris en compte. Les échelles spatiales sont en nanomètres. Le profil géométrique du réseau est superposé en trait noir. Pour le champ magnétique, 2 périodes sont représentées. Pour le champ électrique E_x, il s'agit d'un zoom autour d'une cavité.

Jusqu'où peut-on aller ?

Toujours dans l'optique d'améliorer le facteur de qualité des exaltations internes aux cavités, on peut encore considérer un réseau de fentes larges de $\boxed{w = 10 \text{ Å}}$, dont la période d serait cette fois bien plus grande que précédemment. J'ai poussé l'étude juqu'au cas $\boxed{d = 200 \text{ nm}}$ (autrement dit, $w/d = 0.005$). L'indice effectif de cavité a justement été donné en début de section, Figure 8.11.

=> Pour pouvoir simuler la réponse optique d'une telle structure, je me suis volontairement placé en incidence normale de sorte à ne travailler qu'avec les valeurs propres données par la "sous-équation" donnant les modes pairs. En effet, les dimensions choisies ici imposent d'aller chercher un *grand* nombre de racines *significatives*, à chaque fréquence d'étude, pour avoir un spectre de réponse bien stablisé. Jusque là, les spectres ont tous été calculés en prenant en compte, pour la rigueur informatique, aussi bien les fonctions paires que les fonctions impaires (bien que ces dernières n'aient pas de poids en incidence normale). Ici, $\theta = 0$, je me suis permis de court-circuiter toutes les racines "impaires" intermédiaires pour atteindre au moins 32 modes propres *pairs* (*i.e.* au-delà du rang 70 dans l'arrangement total des racines).

Les spectres de réponse de ce système sont tout à fait similaires à ceux présentés tout au long de ce Chapitre. Donnons juste les chiffres essentiels.

J'ai obtenu des intensités du champ E_x avoisinant les :

31000 à $1.14eV$ ($11400cm^{-1}$, proche infrarouge), pour une profondeur $\underline{h = 15 \text{ nm}}$
19000 à $1.69eV$ ($13650cm^{-1}$, rouge visible), pour $\underline{h = 10 \text{ nm}}$.

Le cas de période encore plus grandes (par exemple $d = 400nm$) n'a pu être traité en raison de l'émergence d'instabilités dans le programme principal de simulation. Cela dit, les ordres de grandeur obtenus pour $d = 200$ nm suffisent amplement pour notre discussion. La section efficace du **signal Raman** variant comme la puissance quatre du champ électrique normalisé, on a donc un facteur d'exaltation typique : $\boxed{G \sim |E_x/E_0|^4 \sim 10^9}$.

A ma connaissance, en théorie, de telles exaltations du champ électromagnétique n'ont jamais été atteintes ou simulées pour des structures-réseaux sub-longueur d'onde (en métal *réel*). Gardons d'ailleurs dans un coin de notre tête que, très localement, au niveau de l'embouchure des fentes, le champ électrique *total* est encore plus fort. On le doit au "lightning rod effect", selon lequel les charges vont naturellemnt se concentrer au niveau des arêtes métalliques, sous l'effet du champ électromagnétique (voir page 75). Les *coins supérieurs* de cavités sont ainsi auréolés d'un puissant gradient de champ à la résonance, et constituent les vrais "points chauds" du système. L'intensité (module au carré) environnante peut être 2 à 3 fois supérieure à celle du seul champ E_x. On imagine ainsi que l'ensemble des molécules sujettes à de telles excitations puissent subir un processus Raman amplifié.

Sur la validité des résultats - questions ouvertes

Les simulations effectuées sur les réseaux nanométriques sont évidemment soumises à la validité de la constante diélectrique régulièrement employée, au niveau de gravures aussi fines.

Par exemple, à l'échelle d'ouvertures extrêmement sub-longueur d'onde, on ne peut plus considérer que le gaz d'électrons est délimité par le profil purement géométrique de la structure : la densité électronique varie continument à la traversée des parois métalliques, et le modèle lamellaire ne peut plus être correct. Un autre point est que si le vecteur d'onde Λ du mode fondamental (ou l'indice effectif) devient très grand, la permittivité relative du métal ne dépend plus uniquement de la fréquence ω, mais aussi du vecteur d'onde local : $\varepsilon = \varepsilon(\omega, \vec{k})$. Il faut alors revenir à une théorie plus générale de la fonction diélectrique (théorie de Lindhard), et inclure $\varepsilon(\omega, \vec{k})$ dans l'équation aux valeurs propres si sa formule analytique est physiquement pertinente.

En tout cas, les résultats présentés ici ne devraient pas être transposables aux réseaux nanométriques en transmission, car la permittivité de très minces lamelles de métal n'est plus celle du matériau massif, ce qui peut conduire à des effets d'exaltation nouveaux, voire exotiques, notamment plus forts si le $|\varepsilon_m|$ **local** diminue[17]. On aurait en outre le couplage supplémentaire des plasmsons de surface entre les interfaces *horizontales* du système.

[17] La question se poserait surtout pour des nanoparticules métalliques (agrégats ou colloïdes).

Il faut donc être prudent sur la définition de la constante diélectrique de très petits objets matériels, c'est pourquoi on n'a considéré dans ce chapitre, que des cavités vides, plutôt que remplies d'un quelconque diélectrique. On peut toutefois penser que si des molécules sont déposées sur la surface métallique et se comportent comme des dipôles orientables, elles pourraient contribuer, du simple fait de leur présence (et pourvu qu'elles soient suffisamment nombreuses), à l'augmentation de l'indice purement "diélectrique" du mileu interne à la cavité, chose qui irait en faveur d'une résonance Fabry-Perot accrue.

Nous supposons également que les fortes amplitudes des champs, dans les cavités, n'impliquent jamais de phénomènes non-linéaires.

Le problème électromagnétique devient plus délicat si le vecteur Λ, qui caractérise le mode plasmon de cavité, est de l'ordre de (ou dépasse) le vecteur d'onde de Fermi k_F du gaz d'électrons. Si le vecteur des plasmons-polaritons de surface devient suffisamment grand, le moment communiqué à l'électron peut provoquer, à énergie constante, la création d'une paire électron-trou. Ces excitations *individuelles* peuvent détériorer le comportement collectif des électrons (on a alors un amortissement de Landau de l'oscillation plasma), mais l'émission de lumière due à la recombinaison des paires électron-trou pourrait rendre compte du *fond inélastique généralement observé sur le signal Raman* [17].

Que ce soit pour l'argent ou l'or, on a $k_F = 1,2.10^8 cm^{-1}$ [1] à température ambiante[18]. Considérons maintenant le cas de la fente nanométrique, de largeur $w = 10$Å, traité plus haut. Le vecteur d'onde du mode fondamental est plus grand vers les hautes fréquences du visible. Pour une énergie $E = 2.5eV$ ($20500cm^{-1}$), on trouve (d'après la Figure 8.11) $\Lambda = n_{eff}k = 20 \cdot 2\pi \cdot 20500cm^{-1} = 2.5710^6 cm^{-1} << k_F$. Les résultats numériques du paragraphe précédent devraient donc être physiquement pertinents[19].

Enfin, ce qu'on a obtenu dans le rouge et l'infrarouge pour l'Argent est tout à fait transposable aux réseaux en Or, puisque les constantes diélectriques de ces métaux sont, dans *ce* domaine spectral, assez semblables. On devrait s'attendre à des effets moins prononcés avec l'Aluminium car celui-ci est plus absorbant.

---

[18]Pour l'argent, le libre parcours moyen d'un électron vaut $l_{ag} = 5,23.10^{-8}m$ ($\sim 50nm$) (à température ambiante) et son temps de relaxation est $\tau_{ag} = 3,76.10^{-14}$s. Vitesse de Fermi $v_F = l/\tau$.

[19]En toute rigueur, le calcul à effectuer doit être le suivant : le moment minimum $\vec{p}$ que le polariton d'énergie $E_p = \hbar\omega$ doit communiquer à un électron du niveau de Fermi (de moment k_F) pour créer une paire électron-trou de moment k', est tel que : $k' = p + k_F$ avec $\frac{(\hbar k')^2}{2m} = E_p + \frac{(\hbar k_F)^2}{2m}$, ce qui conduit à l'équation : $E_p = \hbar\omega = (\hbar p)^2/(2m) + v_F\hbar p$, où $v_F = \hbar k_F/m$ est la vitesse de Fermi. Pour une énergie $E_p = 2.5eV$, on trouve $p = 2,48 \cdot 10^7\ cm^{-1}$ (soit $\lambda = 2.53nm$) avec l'argent. $\vec{p}$ est le vecteur d'onde de coupure au-delà duquel les excitations de particules individuelles ont lieu, au détriment des excitations collectives du plasma (amortissement de Landau). Le vecteur d'onde Λ du plasmon-polariton excité dans la cavité de largeur $w = 10$Å est bien inférieur (d'un ordre de grandeur) à p.

Cela étant dit, on voir poindre la possibilité d'exciter des paires électron-trou dans la gamme du visible, grâce à des plasmons-polaritons de très grand vecteur d'onde, dont l'existence provient du caractère typiquement "angstrométrique" de la structure (en l'occurence des cavités).

8.4 En Guise de conclusion

Les défauts de surface tels que les cavités rectangulaires à profil nanométrique, excitables par des longueurs d'onde qui sont plusieurs centaines de fois leur taille, sont d'excellents candidats pour expliquer les phénomènes de réflexion anormale observés, et incarner les fameux sites actifs conduisant au SERS lorsqu'on y dépose des molécules. La clef de l'explication réside dans l'augmentation exceptionnelle du vecteur d'onde des plasmons de surface responsables du guidage de la lumière le long des parois de cavité, si bien que des résonances Fabry-Perot sont possibles pour des profondeurs extraordinairement petites. On a d'ailleurs intérêt à prendre une grande période de réseau pour favoriser cet effet. Nous avons aussi vérifié que le rôle d'éventuels plasmons horizontaux n'était pas ceux qui rendaient compte de l'absorption anormale d'une part, et des exaltations géantes annoncées d'autre part. C'est juste qu'à quelques nanomètres près, quand on passe de l'intérieur des cavités à l'extérieur du système, la physique change complètement.

Il faut bien rappeler que les simulations faites dans ce chapitre portent sur des structures unidimensionnelles, et que la généralisation des conclusions à des géométries 2D (trous de largeur sub-longueur d'onde) n'est pas permise. Il ne faut pas exclure que des défauts de géométries bien différentes peuvent entrer en résonance. En réalité, les substrats employés pour l'effet SERS sont très hétérogènes, avec une répartition aléatoire des sites potentiellement actifs. De plus, il faut tenir compte d'un effet de moyenne [5] : le signal Raman enregistré correspond en effet à la moyenne des signaux non exaltés, produits sur la majeure partie de l'échantillon, et des signaux fortement exaltés produits précisément au niveau des points chauds.

La grande différence, dans le cas d'une surface métallique type réseau de rainures, c'est que tous les sites actifs (cavités) sont de géométrie simple, parfaitement connue. Les exaltations locales et les gradients de champs sont maintenant prédictibles. Qui plus est, la répartition des sites est périodique. Il serait alors possible de jouer sur la "densité" et le rapport d'aspect des sites "chauds", sans réduire la qualité des résonances, en vue d'optimiser la réponse Raman. Grâce aux nombreux éléments d'étude que contient ce rapport, on sait sur *quoi* on peut jouer, *pourquoi* on a tel ou tel effet, et dans quelle mesure cela change quantitativement. L'enjeu est important car ces réseaux nanométriques constitueraient, de ce point de vue, des *surfaces reproductibles, ajustables spectralement, à fort facteur d'exaltation.*

Bibliographie

[1] C.Kittel, *Physique de l'Etat Solide*, Ed. Dunod (Paris, 1998, 7ème édition).

[2] M.Fleischmann, P.J.Hendra, et A.J.McQuillan, *Chem.Phys.Lett.*, **26**, 163 (1974). "Raman spectra of pyridine adsorbed at a silver electrode"

[3] M.Moskovitz, *Reviews of Modern Physics*, Vol **57**, No 3, Part I (July 1985) "Surface Enhanced Spectroscopie"

[4] A.Otto *et al*, *J.Phys. : Condens.Matter* **4**, 1143 (1992). (revue sur le SERS).

[5] A.Débarre, R.Jaffiol, C.Julien, D.Nutarelli et P.Tchénio, *J.Phys.IV* France, **119**, 27-34 (2004) "Molécule Unique, Nanotube de Carbonce et Exaltation Raman"

[6] K.Kneipp et al, *Phys.Rev.Lett.* **78**, 1667 (1997). "Single Molecule Detection Using Surface-Enhanced Raman Scattering (SERS)"

[7] S.Nie et S.R.Emory, *Science* **275**, 1102 (1997).

[8] O.Hunderi et H.P.Myers, *J.Phys.F : Metal Phys.*, Vol.**3**, p.683 (1973). "The Optical Absorption in Partially Disordered Films"

[9] I.Pockrand, *Chem.Phys.Lett.* **92**, 509 (1982). "Surface-enhanced Raman scattering from evaporated Ag films : Size of relevant roughness features and range of classical enhancement"

[10] R.W.Wood, *Philos. Mag*, **38**, 98 (1919). "Optical properties of films of sodium and potassium".

[11] E.V.Albano, S.Daiser, G.Erlt, R.Miranda, et K.Wandelt, *Phys.Rev.Lett.* **51**, 2314 (1983) "Nature of SERS Active Sites on Coldly Condensed Ag Films"

[12] A.Wirgin et T.Lopez-Rios, *Optics Communications*, **48**, 416 (1984) ; T.Lopez-Rios et A.Wirgin, *Solid State Communications*, **52**, pp. 197-201 (1984) "Role of Waveguide and Surface Plasmon Resonances in Surface-Enhanced Raman Scattering at Coldly Evaporated Films"

[13] T.Lopez-Rios et al, *Phys.Rev.Lett.* **81**, 665 (1998). "Surface Shape Resonance in Lamellar Metallic Gratings"

[14] J.K.Gimzewski, A.Humbert, J.G. Bednorz, et B.Reihl, *Phys.Rev.Lett.* **55**, 951 (1985) "Silver Films Condensed at 300 and 90K : Scanning Tunneling Microscopy of their Surface Topography"

[15] C.Douketis, Z.Wang, T.L.Haslett, et M.Moskovits, *Phys.Rev.B* **51**, 11022 (1995). "Fractal character of cold-deposited silver films determined by low-temperature scanning tunneling microscopy"

[16] E.D.Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic, New York, 1985).

[17] E.Burstein, Y.J.Chen, C.Y.Chen, S.Lundquist et E.Tosatti, *Solid State Comm.* **29**, 567 (1979). "Giant Raman scattering by adsorbed molecules on metal surfaces"

Chapitre 9

Conclusion Générale

Alors que dans un milieu diélectrique classique, le guidage ou le confinement de la lumière propagative est limité à des motifs dont la taille minimale est de l'ordre de la longueur d'onde λ (limite de diffraction), il peut être réalisé dans des motifs largement sub-longueur d'onde dans le cas des métaux. Cette possiblilité exige que la lumière soit supportée par des modes électromagnétiques qui sont, par nature, confinés à un plan, à savoir les *plasmons de surface*. Pour cela, la polarisation TM (définie par rapport à la direction utile de propagation des plasmons) est fondamentalement nécessaire.

Dans le cas d'une gravure de profil rectangulaire et de largeur $w << \lambda$, les plasmons de parois se couplent et construisent un *guide d'onde permanent* (sans fréquence de coupure). Comme la profondeur h de la cavité est *finie*, on peut avoir, à des fréquences spécifiques, une mise en place d'ondes stationnaires qui conduisent à des *résonances (amorties) de type Fabry-Perot*. Ces résonances traduisent physiquement des *exaltations du champ lumineux* (sous forme de plasmons-polaritons) *au sein* de la cavité, d'autant plus fortes que le rapport d'aspect h/w est grand (d'où l'intérêt d'aller chercher de très petites géométries).

Lors des résonances Fabry-Perot, il apparaît un *moment dipolaire effectif* à l'embouchure des fentes sub-longueur d'onde. C'est cette vision qui a permis d'appréhender une collection quelconque de cavités résonnantes comme autant de moments dipolaires *en interaction* (couplés par les champs diffusés par chacun d'eux), et de comprendre alors les phénomènes de localisation de la lumière liée à la symétrie de l'arrangement. En effet, chaque cavité, en tant que dipôle rayonnant, est une source secondaire d'excitation pour ses voisines, si bien qu'elle renforce ou atténue, selon l'éloignement mutuel, la résonance du champ dans telle ou telle autre cavité.

Dans le cas d'une simple paire de gravures sub-longueur d'onde, séparées par une distance *également* sub-longueur d'onde, la résonance en phase (respectivement en opposition de phase) des cavités, au cours de laquelle les deux moments dipolaires s'additionent (resp. s'annihilent presque), s'accompagne de fortes (resp. de faibles) *pertes radiatives*. Il en résulte alors une concentration de la lumière relativement faible (resp. très intense) au sein du système. D'ailleurs, les effets retardés jouent un rôle dans la largeur spectrale des résonances, ce qui est plutôt inattendu étant donné le couplage en champ proche.

On comprend maintenant que plusieurs cavités en présence réagissent collectivement, comme un ensemble d'oscillateurs couplés, possédant un certain nombre de modes propres associés à des fréquences propres distinctes. L'existence et l'excitation compétitive de tous ces modes, plus ou moins larges spectralement, expliquent que des fentes, pourtant séparées d'une distance sub-longueur d'onde, *ne recueillent pas la même quantité de lumière.* La haute *susceptibilité fréquentielle* de la surface corruguée rendrait compte assez justement des phénomènes de *hot spot* observés sur des surfaces métalliques à caractère désordonné.

Si les arrangements de sillons possèdent des propriétés de symétrie simples (triplet de cavités équidistantes, par exemple), on peut expliciter les modes propres du système. On a notamment vu que le couplage en champ proche de N cavités, identiques et équidistantes deux à deux, lève fortement la dégénérescence de leur mode Fabry-Perot commun pour donner N modes collectifs bien hiérarchisés : celui qui a la largeur de résonance la plus grande est aussi celui qui a la fréquence propre la plus basse.

Dans un doublet de fentes séparées par une distance sub-longueur d'onde, on obtient deux modes Fabry-Perot dont les expressions analytiques et les facteurs d'excitation sont parfaitement connus. En excitant alors préférentiellement l'un ou l'autre, on peut contrôler, depuis le champ lointain, la localisation de la lumière dans la cavité de notre choix, ou les faire résonner toutes les deux de manière optimale. Ce contrôle peut être extensible, mais de manière limitée, dans un n-uplet de fentes, ce qui ouvrirait peut-être la voie à l'adressage de la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde. Il n'y a pas encore eu d'illustration expérimentale à ce sujet, mais la preuve a été donnée que de nouveaux modes Fabry-Perot existent dans des réseaux à plusieurs cavités par période. Les prédictions théoriques (faites grâce à la méthode modale restreinte) et les mesures expérimentales se sont trouvées en très bon accord.

En prenant comme modèle de surface le réseau périodique de cavités *fortement* sub-longueur d'onde, nous avons pu montré, également, que de très petits défauts de surface, même faiblement denses, pouvaient avoir un impact considérable sur la réponse optique macroscopique du système, du fait de leur résonance électromagnétique (ici, des modes de cavités). On a notamment rencontré le cas où *toute* l'énergie incidente était absorbée par un réseau de sillons dont les dimensions transverses sont *plusieurs centaines de fois inférieures à la longueur d'onde d'excitation.* Ces résultats théoriques ont été mis en parallèle avec les phénomènes d'absorption optique anormale observés sur certaines surfaces métalliques dans le visible, comme les films déposés à froid, dont les rugosités sont justement de taille nanométrique. L'absorption anormale serait ainsi conjointe à des exaltations géantes de la lumière au sein d'interstices profonds, qui constituent par la même occasion de véritables pièges pour les molécules déposées en surface. Le fait que les films métalliques rugueux puissent être SERS-actifs trouvent là un argument théorique fondamental.

La raison physique de ce comportement, c'est qu'à l'intérieur de cavités métalliques extrêmement étroites, le plasmon de paroi (mode fondamental) possède un moment vectoriel beaucoup plus grand que celui de la lumière, si bien que les conditions de résonance Fabry-Perot peuvent être réunies pour de très petites profondeurs de cavité,

dans une zone spectrale où on ne les obtiendrait pas si les canaux étaient plus larges. Les progrès technologiques pour graver des surfaces à des échelles nanométriques devraient amener de nouvelles opportunités pour obtenir des surfaces métalliques ayant un pouvoir d'exaltation électromagnétique prédéfini (*i.e.* avec une absorption optique "anormale" prédéfinie).

Ces dernières conclusions découlent de calculs réalisés avec la méthode modale *exacte*. En effet, la quantification des résonances électromagnétiques en jeu, si elle se veut réaliste, doit pleinement tenir compte du caractère réel (absorbant) du métal. La méthode présente manifestement une grande stabilité et une convergence rapide pour des géométies sub-longueur d'onde et pas trop disproportionnées. Elle est particulièrement adaptée pour l'étude de motifs périodiques extrêmement petits. Cela dit, un nombre conséquent de tableaux de valeurs propres doit être établi pour obtenir des spectres de réponse probants.

Les phénomènes physiques dont il est question dans ce rapport ne sont pas automatiquement transposables aux géoméries à deux dimensions dans la mesure où des trous (circulaires ou rectangulaires) de taille sub-longueur d'onde ne possèdent pas de mode guidé, quelle que soit la polarisation. Toutefois, des travaux relativement récents semblent indiquer que des ouvertures *annulaires* (en l'occurrence des trous circulaires remplis en leur centre d'un cylindre matériel coaxial, comme si on "bouclait" une rainure sur elle-même) supportent un mode électromagnétique guidé[1], mais dont le comportement n'a pas été clairement défini.

Enfin, ces travaux de thèse supposent que le matériau structuré soit de constante diélectrique *négative* (et même fortement négative) dans le domaine spectral considéré. Ce peut être un métal à basses fréquences (métaux de Drude), mais aussi un *cristal ionique* dans la bande de *restsrahlen* (région des micro-ondes ou infrarouge lointain, en général). Dans le premier cas, c'est le couplage photon/électron qui intervient, dans le deuxième, c'est le couplage photon/phonon optique. On devrait s'attendre à des exaltations du champ électrique particulièrement élevées avec les composés ioniques. Les semi-conducteurs devraient manifester des comportements optiques aussi intéressants[2]. Enfin, l'emploi de matériaux *non-linéaires* (c'est-à-dire dont les propriétés optiques dépendent implicitement de l'amplitude locale du champ), comme les milieux à effet Kerr, devrait conduire, là aussi, à l'étude de phénomènes électromagnétiques nouveaux.

* * *

[1] Baida et Van Labeke, Phys.Rev.B, **67**, 155314 (2003).

[2] Il est bon de mentionner l'existence (moins connue) de modes surfaciques de Brewster-Zenneck, dans le cas d'une interface entre deux milieux diélectriques dont l'un devient absorbant (par apparition d'une partie imaginaire dans la permittivité), ou entre un diélectrique et un métal si $\Re(\varepsilon_m)$ passe par des valeurs *positives* à certaines fréquences. Les modes de Brewster-Zenneck (BZ) peuvent en effet apparaître si $0 < \Re(\varepsilon_m) < \varepsilon_d$ et $\Im(\varepsilon_m) > \Re(\varepsilon_m)\sqrt{\frac{\varepsilon_d+\Re(\varepsilon_m)}{\varepsilon_d+\Re(\varepsilon_m}}$. Des chercheurs ont récemment souligné le rôle significatif qu'ils pouvaient avoir dans la transmission de la lumière à travers des ouvertures sub-longueur d'onde d'un réseau métallique (en chrome, en l'occurrence) dont la partie réelle de la constante diélectrique devenait parfois positive dans le domaine infra-rouge. La transition entre modes de plasmons de surface et modes BZ serait continue. *Phys.Rev.B* **71**, 075404 (2005).

Annexe A

Permittivité d'un Métal et Tables

L'équation de Maxwell-Ampère, traduisant l'émergence d'un champ magnétique $\vec{H}$ par un champ électrique variable $\vec{E}$ est : $\vec{rot}(\vec{H}) = \vec{j} + \varepsilon_0\varepsilon_r\frac{\partial\vec{E}}{\partial t}$

$\varepsilon_0\varepsilon_r$ est la permittivité du matériau dans lequel se propage le champ électromagnétique. ε_r, appelée permittivité relative ou constante diélectrique relative, est une quantité réelle, sans dimension. Le terme $\varepsilon_0\varepsilon_r\frac{\partial\vec{E}}{\partial t}$ correspond aux "courants de déplacement". Nous traiterons toujours avec des champs dont la dépedance temporelle est en $\boxed{e^{-i\omega t}}$. Si nous considérons alors un métal de conductivité $\sigma(\omega)$, la loi d'Ohm $\vec{j} = \sigma\vec{E}$ implique (en l'absence de source de courant extérieure) : $\vec{rot}(\vec{H}) = (\sigma - i\omega\varepsilon_0\varepsilon_r)\vec{E}$
On écrit alors l'équation de Maxwell-Ampère sous la forme réduite :

$$\vec{rot}(\vec{H}) = \varepsilon_0\hat{\varepsilon}\frac{\partial\vec{E}}{\partial t} \text{ avec : } \boxed{\hat{\varepsilon}(\omega) = \varepsilon_r + \frac{i\sigma(\omega)}{\omega\varepsilon_0} = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2}$$

$\hat{\varepsilon}(\omega)$ est la permittivité diélectrique relative *généralisée*.

Pour un métal de Drude, $\varepsilon_r = 1$ et $\sigma(\omega) = \sigma_0/(1 - i\omega\tau)$ avec $\sigma_0 = Ne^2\tau/m$.

Si $\omega\tau << 1$ (micro-ondes et infra-rouge lointains pour l'argent ou l'or), la partie réelle de $\hat{\varepsilon}$, ε_1, comprend le rôle des courants de déplacements (responsables du rayonnement), et la partie imaginaire ε_2 intègre les courants ohmiques (pertes par conduction[1]). Aux fréquences optiques, la conductivité devient complexe.

Dans la thèse, lorsque nous considérons la constante $\boxed{\varepsilon}$ d'un métal, nous sous-entendons systématiquement la constante généralisée $\hat{\varepsilon}(\omega)$, qui est donc *complexe* (sans dimension). $\sqrt{\varepsilon}$ définit l'indice optique du matériau. L'onde électromagnétique se propage donc suivant une loi $\sim e^{ik\sqrt{\varepsilon}x} \sim e^{ik\Re(\sqrt{\varepsilon})x}e^{-k\Im(\sqrt{\varepsilon})x}$. L'amortissement spatial $k\Im(\sqrt{\varepsilon})$ définit une longueur de pénétration, appelée *profondeur de peau* du métal $\delta = 1/Im(k\sqrt{\varepsilon})$.

Dans les domaines infrarouge et visible (voir Table page 219), les métaux comme l'or, l'argent ou l'aluminium sont tels que $Re(\varepsilon) < 0$ et $Im(\varepsilon) > 0$ avec en général $|Im(\varepsilon)/Re(\varepsilon)| << 1$. De plus, $|\varepsilon(\omega)|$ décroît quand la pulsation ω augmente.

Un "bon métal" est tel que $Re(\varepsilon) << 0$ (bon *réflecteur*). Par "métal parfait", nous entendrons $\varepsilon = -\infty$.

[1] Si les courants de déplacement sont négligeables ($|\varepsilon_2/\varepsilon_1| >> 1$), on obtient une équation de diffusion : $\vec{\Delta}\vec{E} = \sigma\frac{\partial\vec{E}}{\partial t}$. La conductivité σ, c'est-à-dire la partie imaginaire de ε aux basses fréquences, est responsable de l'absorption du champ électromagnétique par le métal (effet Joule).

Nombre d'onde $1/\lambda$ *en* cm^{-1}	*Longueur d'onde* λ *en* μm	*énergie en eV*
500. Infrarouge↓	20.	0.062
1000.	10.	0.124
1250.	8.	0.155
1500.	6.66	0.186
1750.	5.71	0.217
2000.	5.	0.248
2500.	4.	0.310
3000.	3.33	0.372
3500.	2.85	0.434
4000.	2.5	0.496
4500.	2.22	0.558
5000.	2.	0.620
5500.	1.81	0.682
6000.	1.66	0.744
6500.	1.53	0.806
7000.	1.428	0.868
7500.	1.33	0.930
8000.	1.25	0.992
8500.	1.17	1.054
9000.	1.11	1.116
9500.	1.05	1.178
10000.	1.	1.240
11000.	0.909	1.364
12000.	0.833	1.488
13000.	0.769	1.612
13500. Visible↓	0.740	1.674
14000.	0.714	1.737
15000.	0.666	1.861
16000.	0.625	1.985
17000.	0.588	2.109
18000.	0.555	2.233
19000.	0.526	2.357
20000.	0.5	2.481
21000.	0.476	2.605
22000.	0.454	2.7295
23000.	0.434	2.853
24000.	0.416	2.977
25000.	0.4	3.101
26000. Ultra-violet↓	0.384	3.225
27000.	0.370	3.349
28000.	0.357	3.473
29000.	0.344	3.598
30000.	0.333	3.722
35000.	0.285	4.34
40000.	0.25	4.962

Rappels : $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ en $m^{-1} =$ $200\pi\cdot$(nbre d'onde en cm^{-1}). Energie (eV)= 12398.5/λ(Å).

Nombre d'onde $1/\lambda$ *en* cm^{-1}	$Re(\varepsilon_{OR})$	$Im(\varepsilon_{OR})$	δ *en nm*
1000.	-2810.7	1318.7	29.2
2000.	-961.5	248.8	25.4
3000.	-435.5	84.49	25.3
4000.	-246.0	39.15	25.2
5000.	-157.6	21.43	25.3
6000.	-111.5	13.40	25.1
7000.	-82.63	8.89	25.
8000.	-73.47	6.51	23.2
9000.	-60.65	4.76	22.7
10000.	-46.60	3.52	23.3
12000.	-29.59	2.08	24.3
14000.	-17.22	1.348	27.3
16000.	-9.11	1.149	32.9
18000.	-7.60	1.867	31.8
20000.	-2.92	3.26	41.6
22000.	-1.31	5.45	38.8
24000.	-1.15	6.37	33.9
Nombre d'onde $1/\lambda$ *en* cm^{-1}	$Re(\varepsilon_{ARGENT})$	$Im(\varepsilon_{ARGENT})$	δ *en nm*
1000.	-2738.1	1432.7	29.5
2000.	-909.0	212.8	26.2
3000.	-408.7	65.61	26.15
4000.	-231.1	29.07	26.1
5000.	-151.2	16.59	25.8
6000.	-103.8	11.17	26.0
7000.	-70.02	7.15	27.1
8000.	-59.33	5.59	25.8
9000.	-57.26	3.76	23.3
10000.	-45.72	2.90	23.5
12000.	-30.92	1.687	23.8
14000.	-21.43	1.354	24.5
16000.	-15.51	1.050	25.2
18000.	-11.50	0.829	26.0
20000.	-8.57	0.780	27.1
22000.	-6.31	0.740	28.7
24000.	-4.56	0.717	30.9
Nombre d'onde $1/\lambda$ *en* cm^{-1}	$Re(\varepsilon_{Aluminium})$	$Im(\varepsilon_{Aluminium})$	δ *en nm*
1000.	-7423.9	4543.8	17.72
5000.	-424.3	89.14	15.36
10000.	-90.22	25.83	16.58
20000.	-36.36	9.347	13.09
25000.	-23.38	4.76	13.09

δ désigne la profondeur de peau du métal (définie comme $1/Im(k\sqrt{\varepsilon})$). Ces Tables ont été calculées à partir des données référencées dans le *Handbook* de E.Palik.

Annexe B

Démonstrations et Compléments pour la Partie I

B.1 Equation aux valeurs propres d'une fente isolée

Obtention de l'équation aux valeurs propres dans le problème d'une fente unique, relative à la section 2.4. Pour cela, ré-écrivons les champs magnétiques de la page 17 (avec $A_1 = 0 = B_3$ car β imaginaire) de la manière suivante :

$$\begin{cases} H_z^{(1)}(x,y) = B_1 e^{-i\beta(x+w/2)}.(C_1 e^{i\Lambda y} + D_1 e^{-i\Lambda y}) \\ \\ H_z^{(2)}(x,y) = (A_2 + B_2)\cos(\alpha x) + i(A_2 + B_2)\sin(\alpha x).(C_2 e^{i\Lambda y} + D_2 e^{-i\Lambda y}) \\ \\ H_z^{(3)}(x,y) = A_3 e^{i\beta(x-w/2)}.(C_3 e^{i\Lambda y} + D_3 e^{-i\Lambda y}) \end{cases}$$

Les conditions de continuité de $H_z(x,y)$ et de $\frac{1}{\varepsilon_r}\frac{\partial H_z}{\partial y}$ au passage des interfaces verticales ($w = \pm w/2$), $\underline{\forall y}$, nous conduit à résoudre le système d'équations :

$$\begin{cases} B_1 = (A_2 + B_2)\cos(\alpha w/2) - i(A_2 - B_2)\sin(\alpha w/2) \\ A_3 = (A_2 + B_2)\cos(\alpha w/2) + i(A_2 - B_2)\sin(\alpha w/2) \\ -i\frac{\beta}{\varepsilon_m}B_1 = \frac{\alpha}{\varepsilon_d}[(A_2 + B_2)\sin(\alpha w/2) + i(A_2 - B_2)\cos(\alpha w/2)] \\ i\frac{\beta}{\varepsilon_m}A_3 = \frac{\alpha}{\varepsilon_d}[-(A_2 + B_2)\sin(\alpha w/2) + i(A_2 - B_2)\cos(\alpha w/2)] \end{cases}$$

qui peut se réduire au système suivant :

$$\begin{cases} (A_2 + B_2)[\frac{\alpha}{\varepsilon_d}\sin(\alpha w/2) + i\frac{\beta}{\varepsilon_m}\cos(\alpha w/2)] + (A_2 - B_2)[i\frac{\alpha}{\varepsilon_d}\cos(\alpha w/2) + \frac{\beta}{\varepsilon_m}\sin(\alpha w/2)] = 0 \\ -(A_2 + B_2)[\frac{\alpha}{\varepsilon_d}\sin(\alpha w/2) + i\frac{\beta}{\varepsilon_m}\cos(\alpha w/2)] + (A_2 - B_2)[i\frac{\alpha}{\varepsilon_d}\cos(\alpha w/2) + \frac{\beta}{\varepsilon_m}\sin(\alpha w/2)] = 0 \end{cases}$$

Il existe des solutions non-nulles (modes propres) si et seulement si le déterminant du système est nul, soit :

$$[\frac{\alpha}{\varepsilon_d}\sin(\alpha w/2) + i\frac{\beta}{\varepsilon_m}\cos(\alpha w/2)] \cdot [i\frac{\alpha}{\varepsilon_d}\cos(\alpha w/2) + \frac{\beta}{\varepsilon_m}\sin(\alpha w/2)] = 0$$

Les deux quantités entre crochets donne directement les deux équations transcendantes (2.5) et (2.6), associées respectivement aux modes pairs et impairs (page 18).

Le produit des deux crochets donne l'équation aux valeurs propres *globale* (2.4).

Une manipulation astucieuse permet de résumer les deux sous-équations transcendantes sous une autre forme[1] :

$$\tan^2[w/2\sqrt{k^2\varepsilon_d - \Lambda^2} - m\frac{\pi}{2}] = \frac{\Lambda^2 - k^2\varepsilon_m}{k^2\varepsilon_d - \Lambda^2} \cdot (\frac{\varepsilon_d}{\varepsilon_m})^2 \quad m \geq 0 \tag{B.1}$$

En polarisation TE, il suffit d'ôter la fraction comportant les constantes diélectriques quadratiques. Cette équation, on le rappelle, ne donne que les modes "liés" à la cavité (pas d'onde d'interfaces horizontales).

Dans le problème du guide métallique, les modes ne se propagent pas dans la cavité si $\Lambda^2 < 0$, soit Λ imaginaire [2]. En prenant $\Lambda = 0$, le plus grand entier m possible donne le nombre de modes guidés : il y en a $m + 1$.

$kn_d w/\pi - \frac{2}{\pi} arctg(-\varepsilon_d/\varepsilon_m) = m$ en polarisation TM.

$kn_d w/\pi - \frac{2}{\pi} arctg(-\varepsilon_m/\varepsilon_d) = m$ en polarisation TE.

Supposons le métal parfaitement réflecteur ($\varepsilon_m = -\infty$). Pour la polarisation TM, on voit que, quelque soit w, $m > 0$: on a toujours au moins un mode guidé. En revanche, en polarisation TE, on obtient $2n_d w/\lambda - 1 = m$, donc si la largeur de fente est plus petite que $\lambda/(2n_d)$, il n'y a aucun mode guidé. Cette coupure n'existe pas en TE pour des guides d'ondes diélectriques.

Enfin, si $\Lambda^2 > 0$, comme $\omega = ck$, on peut définir la **vitesse de groupe** $\frac{d\omega}{d\Lambda}$ du mode guidé le long des parois verticales.

B.2 Ecart au cas de parois parfaitement réflectrices

On cherche à résoudre l'équation (2.4) page 18, avec $\varepsilon_m << 0$, c'est-à-dire en tenant compte du caractère fini de ε_m, très élevée en module (métal presque parfait). On considère l'approximation $\beta\sqrt{\varepsilon_m k^2 - \Lambda^2} \approx ik\sqrt{|\varepsilon_m|}$ (justifiée a posteriori).

En métal parfait $\alpha = \frac{p\pi}{w}$. En passant au métal réel, $\alpha = \frac{p\pi}{w} + \delta\alpha$, avec $k\delta\alpha << 1$.

<u>Cas $p = 0$:</u> On part de l'équation donnant les modes propres pairs (dont le mode fondamental) : $\tan(\alpha w/2) + i\frac{\beta\varepsilon_d}{\alpha\varepsilon_m} = 0$ (voir page 19). En métal parfait $\alpha = 0$. En métal réel, $\alpha = \delta\alpha$ et $\tan(\delta\alpha w/2) \approx \delta\alpha w/2$. On obtient immédiatement :

[1] Si on suppose que $\varepsilon_m < 0$, alors selon le domaine d'appartenance de Λ^2, α et β seront réels ou imaginaires purs, et l'équation doit être réelle oubien imaginaire pour avoir une solution. Le cas α imaginaire n'est a priori possible que si $m = 0$: c'est le mode fondamental.

[2] Pour des guides purement diélectriques, où $0 < \varepsilon_m < \varepsilon_d$, la coupure des modes correspond plutôt au fait qu'ils rayonnent dans le milieu de constante ε_m, donc à la condition $\Lambda^2 < \varepsilon_m k^2$.

$$(\frac{\delta\alpha}{k})^2 = \frac{2\varepsilon_d}{kw\sqrt{|\varepsilon_m|}}$$

On note que le résultat est bien compatible avec $\alpha w \ll 1$.

Cas où $p \neq 0$: cette fois, on part de l'équation générale (2.4). Par un développement limité autour des valeurs prises par α en métal parfait, on a $\cos(\alpha w) \approx= (-1)^p$ et $\sin(\alpha w) \approx \sin(p\pi) + \cos(p\pi) \cdot \delta\alpha w$. Il vient alors :

$$(-1)^p - \frac{i}{2}[\frac{p\pi\varepsilon_m}{ik\sqrt{|\varepsilon_m|}\varepsilon_d} + \frac{ik\sqrt{|\varepsilon_m|}\varepsilon_d}{p\pi\varepsilon_m}] \cdot \delta\alpha w(-1)^p = 0$$

En négligeant raisonnablement le second terme situé entre les crochets, on obtient :

$$\frac{\delta\alpha}{k} = -2\frac{\varepsilon_d}{p\pi\sqrt{|\varepsilon_m|}}$$

B.3 Commentaire annexe sur les impédances

L'impédance de surface Z est définie comme le rapport $\frac{Etg}{Htg}$ des composantes des champs électrique et magnétique qui sont tangentielles à la surface délimitant 2 milieux. Elle n'est pas identique du point de vue de l'un ou l'autre côté du dioptre. Au niveau des parois verticales du réseau, $Z = \frac{Ey}{Hz}$ en polarisation TM. On trouve alors :

$$Z = \left| \begin{array}{ll} \frac{\alpha}{kc\varepsilon_0} & \text{côté cavité} \\ \frac{\beta}{kc\varepsilon_0\varepsilon} & \text{côté métal} \end{array} \right.$$

Il existe une condition pour laquelle les impédances de chaque strate du réseau peuvent *s'égaler* (en dehors du cas trivial $\varepsilon_d = \varepsilon_m$). Cela revient à considérer l'égalité $\alpha\varepsilon_m = \varepsilon_d\beta$. En élevant chaque membe au carré, on est conduit à établir la relation dispersive $\Lambda^2 = k^2 \cdot \varepsilon_d\varepsilon_m/(\varepsilon_m + \varepsilon_d)$.

• S'agissant d'un **métal**, c'est la relation des **plasmons de surface** (ceux d'une paroi libre de cavité en l'occurrence). Avec $\varepsilon_m < 0$ et $\varepsilon_d = 1$, les plasmons de surface sont tels que $\Lambda/k > 1$.

• S'agissant de **diélectriques**, on aurait $\varepsilon_{m,d} > 0$. Prenons $\varepsilon_d = 1$. Alors $|\Lambda/k| < 1$, et en posant arbitrairement $\Lambda = \sin(\phi)$ (ϕ n'est qu'un angle fictif), on obtient $\tan(\phi) = \sqrt{\varepsilon_m}$: c'est exactement une condition d'**incidence de Brewster** (qui n'existe qu'en polarisation TM).

Dans le domaine **acoustique**, le coefficient de réflexion à l'interface de 2 milieux d'impédances Z_1 et Z_2 est donné par $r = \frac{Z_2 - Z_1}{Z_2 + Z_1}$ (pour des ondes planes, Z est proportionnelle au rapport de la pression acoustique sur la vitesse d'élongation des particules

matérielles, et vaut $Z = \rho c$ où ρ est la masse volumique du milieu considéré). Par conséquent, si nous rencontrons des conditions pour lesquelles les 2 milieux, dont les propriétés de propagation sont différentes, ont même impédance acoustique, la réflexion devient nulle et l'onde sonore est intégralement transmise.

On y voit l'analogie avec ce qui se passe en optique en polarisation TM. A l'angle de Brewster, pour une interface entre diélectriques (si le milieu 1 a un indice optique plus faible que le milieu 2), l'onde est totalement transmise sans changement de polarisation. Si le milieu 2 est un métal massif ($\varepsilon_m < 0$), l'onde ne peut être transmise et l'énergie est "stockée" en surface (c'est le plasmon de surface, à condition qu'il soit excité par une onde électromagnétique de moment $k_{//} > k$).

B.4 Détails sur la technique de projection

1) les équations de continuité du champ magnétique sont projetées sur la base des modes propres du champ magnétique de la cavité (ici, la base est unimodale).

2) les équations de raccord par l'impédance de surface sont projetées sur la base d'ondes planes (dite de Rayleigh, dans le cas du réseau), qui est *commune* aux champs électrique et magnétique.

• Le procédé 1) donne

$$\forall x \in [-w/2, w/2], \quad e^{ik\sin\theta} + \int_{-\infty}^{+\infty} R(Q)e^{iQx}dQ = (1+r)A$$

La projection sur un élément de la base propre du champ dans la cavité consite à intégrer l'équation $\frac{1}{w}\int_{[-w/2,w/2]}(...)\cos(m\pi(x/w+1/2))dx$. Comme seul le mode fondamental $m = 0$ est pris en compte ici, il vient simplement :

$$sinc(Qw/2) + \int_{-\infty}^{+\infty} R(Q)sinc(Qw/2)dQ = (1+r)A$$

• Le procédé 2) donne

$$i(-k\cos\theta + kZ) + i\int_{-\infty}^{+\infty}(q+kZ)R(Q)e^{iQx}dQ = ik(1+Z)(1-e^{-2ikh})A \cdot \sqcap_x$$

On effectue cette fois la projection $\int_{-\infty}^{+\infty}(...)e^{-iQ'x}dQ$. Ce qui conduit directement[3] à l'extraction du coefficient de réflexion $R(Q)$:

$$R(Q) = R_{sp} \cdot \delta(Q - k\sin\theta) + \frac{w}{\lambda}(1+Z)(1-e^{-2ikh})A\frac{sinc(Qw/2)}{q+kZ}$$

Où $R_{sp} = \frac{\cos\theta - Z}{\cos\theta + Z}$ est la réflectivité spéculaire d'une surface métallique plane.

En injectant R(Q) dans l'équation donnée par 1), on obtient le coefficient A.

[3]Attention : $\int_{-\infty}^{+\infty} e^{i(Q-Q')x}dx = \mathbf{2}\pi\delta(Q-Q')$ où δ désigne classiquement le pic de Dirac. On rappelle en passant que si c>0, $\delta(ct) = (1/c)\delta(t)$. Il faut également noter que si l'impédance Z n'avait pas été prise approximée comme constante ($= 1/\sqrt{\varepsilon}$) mais sous la forme générale $Z(k_x)$ (voir section 3.2.1), le calcul des projections aurait été sensiblement compliqué.

B.5 Convolution par un peigne de Dirac

Démontrons juste que le raccord par l'impédance de surface approximée conduirait, pour un arrangement infiniment périodique de cavités, ayant chacune un coefficient de champ noté $A^{(m)}$ (seul le mode de guide d'onde est pris en compte), à l'équation :

$$(Z-\cos\theta)e^{ik\sin\theta}+\int_{-\infty}^{+\infty}(q/k+Z)R(Q)e^{iQx}dQ=(1+Z)(1-e^{-2ikh})\sum_m A^{(m)}\sqcap^{(m)}(x)$$

Où $\sqcap^{(m)}(x)$ est toujours la distribution "porte" centrée sur la cavité d'indice m (égale à quand 1 dans la cavité, 0 ailleurs).

Du fait de la pseudo-périodicité, $\sum_m A^{(m)}\sqcap^{(m)}(x)=\sum_m e^{im(k\sin\theta)d}A^{(0)}\sqcap^{(0)}(x+md)$.

En effectuant alors la projection sur la base du continuum de Rayleigh $(e^{iQx})_{Q\in]-\infty,+\infty[}$, à savoir $\int_{-\infty}^{+\infty}(...)e^{-iQ'x}dQ'$, il vient :

$$R(Q)=\frac{\cos\theta-Z}{\cos\theta+Z}\delta(Q-k\sin\theta)+\frac{w}{2\pi}(1+Z)\frac{1-e^{-2ikh}}{q/k+Z}A^{(0)}\sum_m e^{im(k\sin\theta)d}sinc(Qw/2)\,e^{-imQd}$$

Or une propriété du peigne de Dirac est que $\sum_m e^{2im\pi(x/a)}=a\sum_m\delta(x-ma)$.
En prenant $a=2\pi/d$, et en changeant d'indice $n=-m$, on obtient bien le peigne qui participera à la convolution appropriée dans l'intégrale de diffusion.

B.6 Comportements des champs électromagnétiques à la surface

On considère une cavité centrée en $x=0$, d'ouverture sub-longueur d'onde, gravée dans une surface *parfaitement conductrice*. En faisant abstraction des champs incident et spéculaire, le champ magnétique auréolant la cavité, dans la région I, est donné par la relation :

$$H_z(x,y)=A\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{sinc(kwu/2)}{\sqrt{1-u^2}}e^{ik(ux+vy)}du \quad \text{où } u^2+v^2=1 \tag{B.2}$$

Le coefficient A est lié à la réactivité de la cavité selon la longueur d'onde d'excitation. Dans le cadre théorique ici fixé, il est parfois possible de simplifier considérablement l'expression des champs électromagnétiques. Nous allons en l'occurrence faire ressortir analytiquement leur comportement général juste à la surface du système, soit en $y=0$, et ce quel que soit x. Pour y parvenir, il faut d'abord ramener toute l'intégration sur l'intervalle $u\geq 0$, grâce au changement de variable approprié (attention aux signes). Ensuite, il faut séparer les contributions dues aux ondes évanescentes, telles que $|u|\geq 1$, de celles dues aux ondes propagatives, correspondant à $|u|<1$.

Les champs électriques et magnétiques, à la surface du système, sont calculés en $y=0$, pour tout x. On peut alors en déduire les comportements asymptotiques, quand

$kx << 1$ et $kx >> 1$. Les calculs sont trop longs pour être détaillés dans cette annexe. Je donne les résultats essentiels.

Le lecteur trouvera dans l'article "Homogeneous and evanescent contributions in scalar near-field diffraction" de M.W.Kowarz (*Applied Optics* **34**, 3055 (1995)) d'autres informations encore, sur les *intensités* des ondes diffractées par une fente rectangulaire.

B.6.1 Champ E_y

En polarisation TM, on a, dans la région I (voir page 16) :

$$E_y \sim \frac{A}{ik} \cdot \frac{\partial H_z}{\partial x}$$

Avec H_z donné par l'équation B.2. Suivant la technique précédemment détaillée, on décompose le champ sous la forme $E_y(x, y = 0) = E_y^{eva}(x, y = 0) + E_y^{prop}(x, y = 0)$, puis on développe le $\sin(kwu/2)$ en exponentielles de manière à faire apparaître des intégrales remarquables, notamment des représentations intégrales de fonctions de Bessel de première ou de deuxième espèce.

A) Contribution des ondes évanescentes à E_y

La contribution des ondes telles que $|u| \geq 1$ donne :

$$E_y^{eva}(x, y = 0) = \left| \begin{array}{ll} (A\pi/kw) \cdot [Y_0(k(x + w/2)) - Y_0(k(x - w/2))] & \text{si } x > w/2 \\ (A\pi/kw) \cdot [Y_0(k(x + w/2)) - Y_0(-k(x - w/2))] & \text{si } |x| < w/2 \\ (A\pi/kw) \cdot [Y_0(-k(x + w/2)) - Y_0(-k(x - w/2))] & \text{si } x < -w/2 \end{array} \right.$$

On rappelle en effet que $\int_1^\infty \frac{cos(au)}{\sqrt{u^2-1}} du = -\frac{\pi}{2} \cdot Y_0(a)$ (ou $N_0(a)$ selon la notation convenue), au sens où $a > 0$ (d'où les 3 cas détaillé ci-dessus).

Les comportements asymptotiques de $Y_0(a)$ sont :
$Y_0(a) \to \sqrt{2/(\pi a)} \sin(a - \pi/4)$ quand $a >> 0$
et $Y_0(a) \to (2/\pi)[\ln(a/2) + 0.5772...]$ quand $a \approx 0$.

On obtient finalement que la part évanescente du E_y se comportent précisément ainsi :

$$\begin{cases} E_y^{eva}(x) = (\frac{2A}{kw}) \cdot \ln[\frac{x+w/2}{w/2-x}] & \text{si } |x| < w/2 \\ \\ E_y^{eva}(x) \sim A \cdot \sqrt{\frac{2\pi}{kx}} \cdot \sin(kx + \pi/4) & \text{pour } x >> w/2 \end{cases}$$

Avec $E_y(-x) = -E_y(x)$.

Le champ E_y possède ainsi une singularité aux points $x = \pm w/2$ avec le métal parfait. C'est intrinsèque à la géométrie étudiée, et ce n'est pas lié au développement modal du champ interne à la cavité.

B) Contribution des ondes propagatives à E_y

La contribution des ondes telles que $|u| < 1$ donne :

$E_y^{prop}(x, y = 0) = (-iA\pi/kw) \cdot [J_0(k(x + w/2)) - J_0(k(x - w/2))]$ pour tout x

puisque on a $\int_0^1 \frac{cos(au)}{\sqrt{1-u^2}} du = \frac{\pi}{2} \cdot J_0(a)$ quel que soit a. J_0 est une fonction paire.

Les comportements asymptotiques sont :
$J_0(a) \to \sqrt{2/(\pi a)} \cos(a - \pi/4)$ quand $a >> 0$
et $J_0(a) \to 1 - (a/2)^2$ quand $a \approx 0$.

Par conséquent, $\begin{cases} E_y^{prop}(x) = iA\frac{\pi}{2}kx & \text{si } |x| < w/2 \\ E_y^{prop}(x) = -iA \cdot \sqrt{\frac{2\pi}{kx}} \cdot \cos(kx + \pi/4) & \text{pour } x >> w/2 \end{cases}$

On concluera sur le fait que **le champ total $E_y(x)$ est impair par rapport à x.**

B.6.2 Champ E_x

On rappelle que :

$$E_x \sim \frac{iA}{k} \cdot \frac{\partial H_z}{\partial y}$$

Il en résulte directement que :

$$E_x^{eva}(x, y = 0) = \left| \begin{array}{ll} 2A/(kw) \cdot [Si(k(x + w/2)) - Si(k(x - w/2))] & \text{si } |x| > w/2 \\ -2A/(kw) \cdot [\pi - Si(k(x + w/2)) + Si(k(x - w/2))] & \text{si } |x| < w/2 \end{array} \right.$$

et $E_x^{prop}(x, y = 0) = -2A/(kw) \cdot [Si(k(x + w/2)) - Si(k(x - w/2))]$ pour tout x

Où $Si(a)$ désigne le sinus intégral, défini, on le rappelle, par :

$$Si(a) = \int_0^a \frac{\sin t}{t} dt \quad \text{avec } Si(\infty) = \pi/2 \text{ et } Si(-a) = -Si(a)$$

Le résultat est obtenu en faisant bien attention d'employer l'égalité conditionnelle :

$$\int_1^\infty \frac{sin(au)}{u} du = \left| \begin{array}{ll} Si(\infty) - Si(a) & \text{si } a > 0 \\ -Si(\infty) - Si(a) & \text{si } a < 0 \end{array} \right.$$

On obtient un **champ E_x total pair en la variable x, au niveau de la surface**. Avec une excellente approximation ($kw \leq 1$), on trouve les comportemnts asymtotiques suivants :

$$Si(k(x + w/2)) - Si(k(x - w/2)) = \left| \begin{array}{ll} \frac{w}{x} \cdot \cos(kx + \pi/2) & \text{si } x > w/2 \\ kw - (kw)^3 \cdot [(\frac{x}{w})^2 + \frac{1}{12}]/3! & \text{si } |x| < w/2 \end{array} \right.$$

B.6.3 Champ H_z

Le champ magnétique total (B.2) s'écrit :

$$H_z(x, y=0) = 2A \int_0^{+\infty} \frac{sinc(kwu/2)}{\sqrt{1-u^2}} \cos(kxu) du$$

Soit[4]

$$H_z(x, y=0) = (2A/kw) \int_0^{+\infty} \frac{sin(k(w/2+x)u) - sin(k(x-w/2)u)}{u\sqrt{1-u^2}} du$$

A) Contribution des ondes propagatives à H_z

Il s'agit d'évaluer la contribution des ondes telles que $|u| < 1$. Or :

$$\int_0^1 \frac{sin(au)}{u\sqrt{1-u^2}} du = \frac{\pi}{2}[aJ_0(a) - \frac{a\pi}{2} J_0(a)\mathbf{H}_1(a) - J_1(a)\mathbf{H}_0(a)]$$

$$\sim_{a\to\infty} \quad \frac{\pi}{2} - \sqrt{\frac{\pi}{2}} \cos(a + \frac{\pi}{4})\sqrt{1/a} + O(1/a) \quad et \quad \sim_{a\to 0} \quad \frac{\pi}{2} a + O(a^3)$$

Par conséquent, on obtient les comportemnts asymptotiques suivants :

$$H_y^{prop}(x, y=0) = \begin{cases} A\sqrt{\frac{2\pi}{kx}} \cdot \sin(kx + \pi/4) & \text{pour } x >> w/2 \\ \pi A \quad \text{si } |x| < w/2 \end{cases}$$

Une estimation plus rapide peut être faite en approximant $sinc(x) = x$, valable si $kw << 1$, ce qui conduit, pour tout x, à :

$$H_z^{prop}(x, y=0) = A\pi \cdot J_0(kx)$$

A) Contribution des ondes évanescentes à H_z

Il s'agit d'évaluer la contribution des ondes telles que $|u| > 1$. On a :

$$\int_1^{\infty} \frac{sin(au)}{u\sqrt{1-u^2}} du = i \int_0^1 \frac{sin(a/u)}{\sqrt{1-u^2}} du$$

$$= ia/4 \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^{n+1} \frac{[\Psi(1/2+n) - 2\Psi(1+n) - \Psi(3/2+n) - 2\ln(2) + 2\ln(a)](a/2)^{2n}}{(1/2+n)\Gamma(1+n)^2} \tag{B.3}$$

Dans le sens où a est pris <u>positif</u> (faire la distinction $x > ou < w/2$).

$$(B.3) \ \sim_{a\to 0} \quad (1 - \ln(a/2) - C_E) \cdot a + O(a^3)$$

On obtient finalement que :

$$H_y^{eva}(x, y=0) = \begin{cases} A\sqrt{\frac{2\pi}{kx}} \cdot \sin(kx + \frac{3\pi}{4}) & \text{pour } x >> w/2 \\ 2A[1 + 2\ln(2) - \ln(kw) - C_E] & \text{pour } |x| < w/2 \end{cases}$$

[4]En se rappelant que $lim_{x\to\infty} \frac{\sin(ux)}{u} = 2\pi\delta(u)$, l'intégration sur $[0; \infty[$ (enlever le facteur 2 si l'intégration se fait sur $]-\infty; \infty[$), donne immédiatement $H_z = 0$ pour $x >> 0$.

B.7 Une analogie aux miroirs plans

Pourquoi la mise en place des ondes stationnaires, dans la cavité, conduit-elle à de si grandes exaltations (du moins en polarisation TM) ? Il paraît en effet contradictoire que l'amplitude des résonances puisse augmenter lorsque l'embouchure w se réduit. La lumière, même guidée, ne semble plus pouvoir pénétrer quantitativement dans la rainure, la section transverse de la cavité devenant très inférieure à λ^2.

Un point de vue d'opticien consisterait à dire que les interfaces métalliques *horizontales* du système (I/II et II/III) font office de miroirs plans (cela vaut pour une cavité ou une fente). Ces deux mirois parallèles, presque parfaitement réflecteurs, séparés d'une distance h, matérialiseraient un résonateur de Fabry-Perot : la cavité sub-longueur d'onde. Or dans un interféromètre de Fabry-Perot, le facteur de qualité des résonances et la sélectivité spectrale sont d'autant meilleurs que les miroirs sont bons réflecteurs (les limitations sont dues à l'absorption des matériaux ou aux pertes radiatives).

Ainsi, l'interface métallique (I/II) bombardée par la lumière incidente, jouerait le rôle d'un miroir de taille caractéristique d dans le cas du réseau (avec $d < \lambda$), et de l'ordre de λ dans le cas d'un fente isolée. En renvoyant la majeure partie de l'énergie incidente, l'interface (I/II) laisserait entrer très peu de lumière dans la petite zone d'interférence (c'est-à-dire la cavité), ce qui irait, de ce pont de vue, en faveur d'une résonance à haut facteur de qualité et d'une plus grande sélectivité spectrale, quand $kh \approx \frac{2n+1}{2}\pi$ (ou $kh = n\pi$ pour une fente en transmission). Par construction, l'ouverture w est aussi la porte de sortie des pertes par rayonnement de l'interféromètre.

Cette interprétation peut refléter assez fidèelement le fait que les largeurs de résonance soient gouvernées par un rapport dynamique $2w/\lambda$ dans le cas d'une fente, et un rapport géométrique w/d dans le cas du réseau d-périodique.

Annexe C

Compléments de la Partie II

C.1 Calcul exact de l'intégrale de diffusion en métal parfait

Dans le cas du système à deux cavités (identiques) sub-longueur d'onde, l'intégrale de diffusion (qui intervient dans le dénominateur des coefficients de champs internes aux rainures) vaut :

$$I = \int_0^\infty \frac{sinc^2(kwu/2) \cdot (1 \pm \cos(kdu))}{\sqrt{1-u^2} + Z} du$$

Le terme d'interférence $\pm\cos(kdu)$ traduit le couplage entre les deux cavités, par l'intermédiaire du champ diffusé à l'extérieur, et n'apparaît simplement pas dans le problème d'une fente isolée. Effectivement, si on fait tendre d vers l'infini, le terme $\cos(Qd)$ oscille tellement rapidement que sa contribution à l'intégrale devient nulle : on est ramené au double cas d'une fente isolée. Il est naturel, avant toute discussion plus poussée, de scinder l'intervalle d'intégration en $[0;1]$ (vecteurs d'ondes radiatives), et $[1;+\infty[$ (vecteurs d'ondes évanescentes) :

$$I = \int_0^1 \frac{sinc^2(kwu/2) \cdot (1 \pm \cos(kdu))}{\sqrt{1-u^2} + Z} du - i \int_1^\infty \frac{sinc^2(kwu/2) \cdot (1 \pm \cos(kdu))}{\sqrt{u^2-1} + Z} du$$

$\Re(I)$ correspondra physiquement ***aux pertes par radiation***, donc quantifiera ce qui va ***limiter la résonance*** de cavité.

$\Im(I)$ correspondra physiquement à l'***effet des ondes de surface*** sur la valeur prise par la fréquence propre, et plus précisément au ***décalage fréquentiel qu'il y aura par rapport à la fréquence Fabry-Perot*** ($kh = \pi/2$).

Dans le cas du métal parfait, $Z = 0$. Les valeurs $u = \pm 1$ sont par conséquent des pôles réels de l'intégrande, qui pourrait mettre à mal la convergence de l'intégrale. Il n'en n'est rien. Les intégrales $\int_0^1 \frac{sinc^2(au)}{\sqrt{1-u^2}} du$ et $\int_1^\infty \frac{sinc^2(au)}{\sqrt{u^2-1}} du$ sont toujours définies <u>si</u> $a \neq 0$, les critères de base d'intégrabilité, sur $[0;1]$ d'une part, et $[1;+\infty[$ d'autre part,

permettent de s'en convaincre sur le champ.

Dans le cas du métal réel, Z est un nombre complexe, par conséquent le pôle de l'intégrande sort de l'axe réel, il n'y a pas de problème de divergence quel que soit u. Une intégration numérique par la méthode de Simpson à haute résolution suffira à trouver la valeur de I avec une précision très satisfaisante.

Cela étant dit, il est possible, quand $Z = 0$, de calculer l'intégrale de diffusion de manière exacte, c'est-à-dire d'en obtenir une formule analytique parfaitement déterminée. Je propose l'astuce consistant à écrire

$$sin^2(a)(1 \pm \cos(b)) = \sin^2(a) \mp \sin^2(b/2) \pm 1/2(\sin^2(\tfrac{2a+b}{2}) + \sin^2(\tfrac{2a-b}{2})) \quad (*)$$

En faisant appel aux performances de MAPLE 7, les deux intégrales $\int_0^1 \frac{sinc^2(au)}{\sqrt{1-u^2}}du$ et $\int_1^\infty \frac{sinc^2(au)}{\sqrt{u^2-1}}du$ (celles qu'on rencontre dans le problème d'une fente unique) peuvent s'exprimer comme combinaison de fonctions spéciales.

$$\int_0^1 \frac{sinc^2(au)}{\sqrt{1-u^2}}du = \frac{\pi}{4a}[4aJ_0(2a) - 2J_1(2a) - 2a\pi J_0(2a) \cdot \mathbf{H}_1(2a) - J_1(2a) \cdot \mathbf{H}_0(2a)]$$

Où J_ν désigne la fonction de Bessel de première espèce d'ordre ν, et $\mathbf{H}_\nu$ l'une des fonctions spéciales de Struve d'indice ν [voir *Tables of Integrals* de Ryjik et Gradstein (Academic Press, New York, 1965), p. 982]. Le comportement asymptotique, en régime sub-longueur d'onde ($a = kw/2 < 1$), est alors[1] :

$$lim_{a\to 0} \int_0^1 \frac{sinc^2(au)}{\sqrt{1-u^2}}du = \frac{\pi}{2}(1 - a^2/6)$$

Quant à l'intégration sur $[1, +\infty[$, c'est en effectuant le changement de variable $u- > 1/u$ que j'ai pu obtenir le résultat :

$$\int_1^{+\infty} \frac{sinc^2(kwu/2)}{\sqrt{u^2-1}}du = \int_0^1 \frac{u\sin^2(a/u)}{a^2\sqrt{1-u^2}}du$$

$$= \sum_{n=0}^{\infty}(-1)^{n+1}\frac{[-\Psi(1+n) + \Psi(1/2+n) - \Psi(2+n) - \Psi(3/2+n) + 2\ln(a)] \cdot a^{2n}}{4(1/2+n)\Gamma(1+n)\Gamma(2+n)}$$

Notons que la fonction $\Gamma(x)$ vérifie la propriété $\Gamma(n) = (n-1)!$ pour n entier positif. $\Psi(x)$ est la fonction "Digamma", égale à la dérivée $d\ln(\Gamma(x))/dx$, telle que, pour tout entier $n > 1$, $\Psi(n) + C_E^{te}$ est un nombre rationnel ($\Psi(0) = -C_E^{te}$).

$C_E^{te} = 0.55721...$ est la *constante d'Euler*.

Dans le cas où $a = kw/2 < 1$, les 2 premiers termes de la somme suffisent amplement à déterminer la valeur de l'intégrale avec une excellente approximation, puisque les termes successifs sont en puissance de a. Cela donne :

[1] *Remarque* : Un moyen d'évaluer rapidement la contribution sur $[0, 1]$ est de faire le développement limité $sinc^2(ax) \approx 1 - (ax)^2/3$ pour $ax << 1$ et d'intégrer : on obtient exactement le même comportement asymptotique.

$$= 3/2 - C_E^{te} - ln(a) + \frac{(12C_E^{te} + 12\ln(a) - 19)a^2}{72}$$

Il ne sera même pas la peine de retenir le terme en a^2 pour $a << 1$.

<u>BILAN</u> :

$$I = \mathcal{D}(\frac{kw}{2}) \mp [\frac{d}{w}]^2 \cdot \mathcal{D}(\frac{kd}{2}) \pm [\frac{d+w}{w\sqrt{2}}]^2 \cdot \mathcal{D}(k(w+d)/2) \pm [\frac{d-w}{w\sqrt{2}}]^2 \cdot \mathcal{D}(k(d-w)/2)$$

Avec

$$\mathcal{D}(x) = \mathcal{D}_1(x) - i\mathcal{D}_2(x)$$

$$\mathcal{D}_1(x) = \frac{\pi}{4x}[4xJ_0(2x) - 2J_1(2x) - 2x\pi J_0(2x) \cdot \mathbf{H}_1(2x) - J_1(2x) \cdot \mathbf{H}_0(2x)]$$

$$\mathcal{D}_2(x) = \sum_{n=0}^{\infty}(-1)^{n+1}\frac{[-\Psi(1+n) + \Psi(1/2+n) - \Psi(2+n) - \Psi(3/2+n) + 2\ln(x)] \cdot x^{2n}}{4(1/2+n)\Gamma(1+n)\Gamma(2+n)}$$

Notons que $\mathcal{D}_1(-x) = \mathcal{D}_1(x)$, et que $\mathcal{D}_2(x)$ est définie au sens où $x > 0$.

=> Par le procédé de décomposition (*) page précédente, il apparaît que l'intégrale de diffusion est la somme de contributions de 4 fentes "virtuelles", de largeurs différentes (w, $w+d$,$d-w$ et d), pondérées par un facteur de normalisation.

<u>1 fente :</u>

On vérifie que lorsque $d \to \infty$, I se résume à $\mathcal{D}(\frac{kw}{2})$, seule intégrale intervenant effectivement dans le problème d'une fente unique.

La fréquence du mode fondamental de la cavité isolée est décalée, par rapport à la fréquence Fabry-Perot, d'un terme proportionnel à $\mathcal{D}_2(\frac{kw}{2})$. La largeur γ_0 de la résonance associée est proportionnelle à $\mathcal{D}_1(\frac{kw}{2})$.

<u>2 fentes :</u>

Le décalage 2Δ qui sépare les fréquences des 2 modes propres du couple de fentes sub-longueur d'onde est proportionnel à

$$\int_1^{\infty} \frac{sinc^2(kwu/2) \cdot cos(kdu)}{\sqrt{u^2-1}} du = \Im(I) - \mathcal{D}_2(\frac{kw}{2})$$

Les largeurs totales γ_+ et γ_- de ces 2 résonances sont données par $\Re(I)$.

$$\frac{\Delta}{\gamma_0} = \frac{\Im(I) - \mathcal{D}_2(\frac{kw}{2})}{\pi} \quad et \quad \frac{\gamma_\pm}{\gamma_0} = \frac{2}{\pi}\Re(I)$$

Evaluation rapide :

Des expressions plus pratiques (et moins barbares) de γ_+ et γ_- peuvent être rapidement obtenues si on approxime $sinc^2(a) \approx 1$ dans l'intégrale de diffusion de départ. Cette approximation est pertinente pour le domaine d'intégration $[0;1]$.

$$\int_0^1 \frac{sinc^2(kwu/2)\cdot[1 \pm \cos(kdu)]}{\sqrt{u^2-1}}du \approx \int_0^1 \frac{1}{\sqrt{u^2-1}}du \pm \int_0^1 \frac{\cos(kdu)}{\sqrt{u^2-1}}du$$

On montre facilement que les largeurs "réduites" s'expriment comme $2/\pi$ fois cette intégrale totale :

$$\frac{\gamma_\pm}{\gamma_0} = (1 \pm J_0(kd)) = \left| \begin{array}{l} 2 \quad \text{avec } (+) \text{ si } kd << 1 \\ (kd/2)^2 \quad \text{avec (-) si } kd << 1 \\ 1 \pm \sqrt{\frac{2}{\pi kd}}\cos(kd - \pi/4) \quad \text{si } kd >> 1 \end{array} \right.$$

En revanche, si l'approximation du $sinc$ est moins rigoureuse sur le domaine $u \in [0;\infty[$, elle donne quand même une dépendance extrêmement fidèle en posant seulement

$$\int_1^\infty \frac{sinc^2(kwu/2)\cdot[1 \pm \cos(kdu)]}{\sqrt{u^2-1}}du \approx \int_1^\infty \frac{sinc^2(kwu/2)}{\sqrt{u^2-1}}du \pm \int_1^\infty \frac{\cos(kdu)}{\sqrt{u^2-1}}du$$

Le décalage Δ réduit s'exprime comme

$$\frac{\Delta}{\gamma_0} = \frac{1}{\pi}\int_1^\infty \frac{\cos(kdu)}{\sqrt{u^2-1}}du = -1/2 \cdot Y_0(kd) = \left| \begin{array}{l} -(\ln(kd/2) + C_E)/2 \quad \text{si } kd << 1 \\ -\sqrt{\frac{1}{2\pi kd}}\sin(kd - \pi/4) \quad \text{si } kd >> 1 \end{array} \right.$$

Retenons qu'au final, pour $kw < kd << 1$, on a asymptotiquement :

$$\int_1^\infty \frac{sinc^2(kwu/2)\cdot[1 \pm \cos(kdu)]}{\sqrt{u^2-1}}du = \left| \begin{array}{l} 3/2 - 2C_E - ln(kw/2) - ln(kd/2) \quad \text{avec le signe } (+) \\ \\ 3/2 - \ln(kw/2) + \ln(kd/2) \quad \text{avec le signe (-)} \end{array} \right.$$

C.2 Analogie à l'interaction dipôle-dipôle

Considèrons 2 dipôles oscillants $\vec{P}_1$ et $\vec{P}_2$, alignés dans une direction commune, donnée par le vecteur $\vec{u}$, dont les centres respectifs sont fixés et distants de R ($\vec{u} = \frac{\vec{R}}{R}$).

Susceptibilité du dipôle oscillant

Notre moment dipôlaire provient de l'oscillation d'une certaine charge q dans le temps, induite par un champ electromagnétique (radiatif) incident.

On pose $\vec{P}(t) = q\vec{r}(t)$ où $\vec{r}(t) = r_0 e^{-i\omega t}\vec{u}$ (par analogie, r_0 correspond à la largeur d'une fente métallique sub-λ).

La charge σ est soumise à une force de rappel de constante $m\omega_0^2$ ainsi qu'à une force de freinage de coefficient $-m\gamma_0$ ($\gamma_0 > 0$). Le dipôle isolé est ainsi assimilé à un oscillateur harmonique amorti vérifiant l'équation du mouvement (on néglige tout moment de "recul" des émetteurs dipolaires dû à l'émission de photons, les dipôles sont fixés à leur place) :

$$m\frac{d^2\vec{r}(t)}{dt^2} = -m\omega_0\vec{r}(t) - m\gamma\frac{d\vec{r}(t)}{dt} + q\vec{E} \quad => [-m\omega^2 + m\omega_0^2 - im\gamma\omega]\vec{r}(t) = \sigma\vec{E}$$

La susceptibilité est définie par la relation $\vec{P} = \chi\vec{E}$ (en unité CGS).

$=> \boxed{\chi(\omega) = \frac{q^2}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_0)}}$

Près de la résonance, on a $\omega_0^2 - \omega^2 \approx 2\omega_0(\omega_0 - \omega)$. En posant $\gamma_0 = \frac{2q^2\omega_0^2}{3mc^3}$ [2], on a :

$\boxed{\chi(\omega) = \frac{3}{4k^3}\frac{\gamma_0}{\omega_0 - \omega - i\gamma_0/2}}$ $(k = \omega/c)$

La pulsation propre du dipôle isolé est ω_0 et la résonance associée a pour largeur γ_0.

Remarque : En unité SI, on aurait $\vec{P} = \varepsilon_0\chi\vec{E}$ avec $\chi_{SI} = 4\pi\chi_{CGS}$.

Nos deux dipôles ayant des susceptibilités supposées identiques, voyons ce qu'il se passe lorsqu'ils sont mis en présence l'un de l'autre.

Champ électrique avec effets retardés

Le champ électrique généré par un dipôle oscillant en un point qui lui est distant de d s'exprime (en unité CGS) comme :

$$\vec{E}(t) = \{(1 + \frac{d}{c}) \cdot \frac{\partial}{\partial t}[\frac{3\vec{n} \cdot (\vec{n} \cdot \vec{P}_{ret}) - \vec{P}_{ret}}{d^3}] + \frac{1}{c^2 d}\vec{n} \times \vec{n} \times \frac{\partial^2 \vec{P}_{ret}}{\partial t^2}\}$$

[2] C'est un rapport conventionnellement usité dans la théorie classique de l'amortissement radiatif; *cf* H.Morawitz, Phys.Rev. **187**, number 5, 1792 (1969).

Où $\vec{P}_{ret}(t) = \vec{P}(t - d/c) = \vec{P}e^{-i\omega t + ikd} = \vec{P}(t)e^{ikd}$ et $\vec{n} = \vec{d}/d$.

Il s'agit d'une expression vectorielle tout à fait générale, prenant en compte, et c'est un point crucial, les **effets retardés**([3]) :

Le champ électrique créé par le dipôle 1 à l'endroit du deuxième dipôle est alors (on prend $\vec{n} = \vec{u}$, vecteur colinéaire aux 2 axes des dipôles, si bien que $\vec{n} \times \vec{P} = \vec{0}$) :

$$\boxed{\vec{E}_{1->2}(t)} = [\tfrac{1}{R^3} - \tfrac{ik}{R^2}] \cdot 2\vec{P}_{1-ret}(t) = \boxed{= 2[\tfrac{1}{R^3} - \tfrac{ik}{R^2}]e^{ikR}\vec{P}_1(t)}$$

Le champ électrique créé par le dipôle 2 à l'endroit du premier dipôle (avec cette fois $\vec{n} = -\vec{R}/R$) a exactement la même expression, en remplaçant P_1 par P_2.

Modes propres du système

$$\vec{E}_{total-en-j} = \frac{1}{\chi}\vec{P}_j = \vec{E}_{incident-en-j} + \vec{E}_{k->j}$$

(l'égalité porte sur les composantes des champs parallèles aux axes dipolaires)

En posant $\boxed{\kappa = 2k^3[\frac{1}{(kR)^3} - \frac{i}{(kR)^2}]e^{ikR}}$ On obtient le système matriciel :

$$\begin{bmatrix} \chi^{-1} & -\kappa \\ -\kappa & \chi^{-1} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} P_1 \\ P_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{//incident-en-1} \\ E_{//incident-en-2} \end{bmatrix}$$

La matrice carrée a pour vecteurs propres $(P_1; P_2) = (1; 1)$ et $(1; -1)$. Les fréquences propres du système dipôle-dipôle sont obtenues par l'annulation du déterminant :

$$\boxed{\chi\kappa = \pm 1} => \boxed{\omega_0 - \omega - i\gamma_0/2 \pm \tfrac{3\gamma_0}{2}e^{ikR}[\tfrac{1}{(kR)^3} - \tfrac{i}{(kR)^2}] = 0}$$

Couplage en champ proche

On se place maintenant dans le régime sub-longueur d'onde $kR << 1$. En effectuant un développement limité à <u>l'ordre 5</u> en kR, on a :

$$\frac{e^{ikR}}{(kR)^3} - i\frac{e^{ikR}}{(kR)^2} = \frac{1}{2kR} + \frac{1}{(kR)^3} + \frac{i}{3}(1 - \frac{(kR)^2}{10})$$

Donc les conditions sont $\boxed{\omega_0 - \omega \pm \frac{3}{2}\gamma_0[\frac{1}{2kR} + \frac{1}{(kR)^3}] \pm \frac{i\gamma_0}{2}[1 \mp (1 - \frac{(kR)^2}{10})] = 0}$

Nos deux résonances sont finalement caractérisées par ce qui suit :

- mode (1,1) $(\chi\kappa = 1)$ $=> \omega_1 \approx \omega_0 - \frac{3}{2}\frac{1}{(kR)^3}\gamma_0$ et $\gamma_1 = 2\gamma_0$

- mode (1,-1) $(\chi\kappa = -1)$ $=> \omega_2 \approx \omega_0 + \frac{3}{2}\frac{1}{(kR)^3}\gamma_0$ et $\gamma_2 = \frac{(kR)^2}{10}\gamma_0$

Ceci concorde parfaitement avec la publication de Lyuboshitz, sauf qu'ici les 2 dipôles sont obligatoriement colinéaires à leur axe de "liaison".

[3] J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, pp.451 (3rd edn, New York, 1999).

Autres aspects

Les solutions générales de notre système matriciel sont :

$\boxed{P_1 = \frac{E_1+\chi\kappa E_2}{(1+\chi\kappa)(1-\chi\kappa)}}$ et $\boxed{P_2 = \frac{E_2+\chi\kappa E_1}{(1+\chi\kappa)(1-\chi\kappa)}}$

Si le champ électrique incident est tel que $E_2 = e^{ik\sin\theta R}E_1$, comme c'est le cas pour 2 fentes métalliques couplées, on a notre complète analogie.

χ^{-1} correspond au déterminant du coefficient A du champ interne à une cavité isolée, soit $\cot(kh) - \frac{ikw}{\pi}\int_0^\infty \frac{sinc^2(kwu/2)}{\sqrt{1-u^2}}du$, tandis que κ correspond au terme de couplage par diffusion Rayleigh entre deux fentes distantes de R : $\frac{ikw}{\pi}\int_0^\infty \frac{sinc^2(kwu/2)}{\sqrt{1-u^2}}\cos(kRu)]du$.

Autre formulation : $P_1 + P_2 = [\frac{1+e^{ik\sin\theta R}}{1-\chi\kappa}]\chi E_1$ et $P_1 - P_2 = [\frac{1-e^{ik\sin\theta R}}{1+\chi\kappa}]\chi E_1$ (P_1 et P_2 vus comme combinaison d'un dipôle équivalent double et d'un "anti-dipôle"). On voit tout de suite que si $E_1 = E_2$ ($kR\sin\theta = 2\pi$), le mode antiphase ne peut avoir lieu.

C.3 Triplet de cavités identiques : modes propres

Cette partie complète la section théorique du Chapitre 5 sur le triplet de cavités sub-longueur d'onde (cavités identiques), séparées de distances quelconques. J'expose ici la recherche analytique des modes propres du système.

Valeurs propres

Il s'agit de calculer les solutions e de l'équation-déterminant $|\mathcal{M} - e \cdot Id| = 0$ (Id est la matrice identité). Utilisant la méthode de Sarrus, on a :

$$\boxed{\Lambda^3 - [G(x_2-x_1)^2 + G(x_3-x_2)^2 + G(x_3-x_1)^2]\Lambda - 2G(x_2-x_1)G(x_3-x_2)G(x_3-x_1) = 0}$$

Où a été effectué le changement de variable pratique $\Lambda = [1 + r - G(0)] - e$.

L'astuce consiste à reformuler cette équation aux valeurs propres ainsi :

$$\Lambda^3 + 3p\Lambda + 2q = 0 \quad \text{avec} \begin{cases} p = -\frac{1}{3}[G(x_2-x_1)^2 + G(x_3-x_2)^2 + G(x_3-x_1)^2] \\ q = -G(x_2-x_1)G(x_3-x_2)G(x_3-x_1) \end{cases}$$

Le discriminant du polynôme de degré 3 vaut $\Delta = p^3 + q^2$ et les solutions Λ, au nombre de trois, sont [cf Aide-mémoire de Mathématiques, de I.N. Bronstein et K.A. Semendiaev, pp.199 (Ed. Eyrolles, Paris, 1990)] :

$$\boxed{\Lambda_1 = u + v \ , \ \Lambda_2 = e^{2j\pi/3}u + e^{4j\pi/3}v \ , \ \Lambda_3 = e^{4j\pi/3}u + e^{2j\pi/3}v}$$

Où $u = [-q + \sqrt{\Delta}]^{1/3}$ et $v = [-q - \sqrt{\Delta}]^{1/3}$

Bilan : $\boxed{e_i = [1 + r - G(0)] - \Lambda_i}$ [4]

Vecteurs Propres

Ils sont donnés par la relation : $\mathcal{M} \cdot \mathcal{A} = e_i \mathcal{A}$ soit par la résolution du système :

$$\begin{bmatrix} \Lambda_i A_1 & -G(x_2 - x_1)A_2 & -G(x_3 - x_1)A_3 \\ -G(x_2 - x_1)A_1 & \Lambda_i A_2 & -G(x_3 - x_2)A_3 \\ -G(x_3 - x_1)A_1 & -G(x_3 - x_2)A_2 & \Lambda_i A_3 \end{bmatrix} = [0]$$

Son déterminant est forcément nul, il existe une infinité de solutions. Les 2 premières équations du système ci-dessus donnent (la 3ème sert de vérification) :

$$\boxed{A_2(\Lambda_i) = \frac{G(x_2-x_1)G(x_3-x_1)+\Lambda_i G(x_3-x_2)}{G(x_2-x_1)G(x_3-x_2)+\Lambda_i G(x_3-x_1)} A_1}$$

$$\boxed{A_3(\Lambda_i) = \frac{\Lambda_i^2-G(x_2-x_1)^2}{G(x_2-x_1)G(x_3-x_2)+\Lambda_i G(x_3-x_1)} A_1}$$

Pour chaque e_i (ou Λ_i), on obtient un vecteur propre $U_i = (1, \frac{A_2}{A_1}, \frac{A_3}{A_1})$.

[4] On a par ailleurs les propiétés suivantes pour ces racines :
$Det(\mathcal{M}) = \Pi_{i=1..3} e_i \quad \sum_i \Lambda_i = 0 \quad$ et $\Pi_i \Lambda_i = 2G(x_2 - x_1)G(x_3 - x_2)G(x_3 - x_1)$.

Annexe D

Compléments de la Partie III

D.1 Séparation des variables et équations de Maxwell

Démonstration concernant la sous-section 6.3.1. Par séparation des variables, on avait posé $H = X(x) \cdot Y(y)$ et on avait obtenu $\frac{1}{Y}Y"(y) = -\Lambda^2$ (voir section 6.2.4).

• De l'équation Maxwell-Ampère, on tire :

$$\forall (x,y), \left| \begin{array}{c} X'(x) \cdot Y(y) = ick\varepsilon_0\varepsilon(x)E_y(x,y) \\ X(x) \cdot Y'(y) = -ick\varepsilon_0\varepsilon(x)E_x(x,y) \end{array} \right.$$

$$\Rightarrow \left| \begin{array}{c} \exists V(x)/ \quad \boxed{E_y = V(x) \cdot Y(y)} \quad et \quad \boxed{\forall x, X'(x) = ik\varepsilon(x)V(x)} \\ \frac{\partial E_x}{\partial y} = \frac{i}{ck\varepsilon_0\varepsilon(x)} \cdot X(x)Y"(y) = -\frac{i\Lambda^2}{ck\varepsilon_0\varepsilon(x)} \cdot X(x)Y(y) \end{array} \right.$$

La continuité de E_y implique celle de $\frac{1}{\varepsilon(x)}X'(x)$.

• De l'équation Maxwell-Faraday, il en découle :

$$\boxed{V'(x) = i[k^2 - \frac{\Lambda^2}{\varepsilon(x)}] \cdot X(x)}$$

D.2 Coefficients de la matrice de tranfert T du réseau

$$Q(d) = M_{\varepsilon_d}(w)M_{\varepsilon_m}((d-w) \cdot Q(0) = e^{ikd\sin\theta}Q(0)$$

$$Q(D) = M_{\varepsilon_d}(w)M_{\varepsilon_m}(L_1) \cdot M_{\varepsilon_d}(w)M_{\varepsilon_m}(L_2) \cdot Q(0) = e^{ikD\sin\theta}Q(0)$$

D.2.1 Réseau d-périodique à 1 cavité

Pour une structure d-périodique comprenant : 1 fente de largeur w et de constante diélectrique ε_d, et 1 couche métallique de largeur $d-w$, de constante ε_m. La matrice

de transfert du réseau est $T = M_{\varepsilon_d}(w)M_{\varepsilon_m}(d-w)$, avec :

$$T_{11} = \cos(\beta(d-w))\cos(\alpha w) - \frac{\varepsilon_d\beta}{\varepsilon_m\alpha}\sin(\beta(d-w))\sin(\alpha w)$$

$$T_{12} = ik\{\frac{\varepsilon_d}{\alpha}\sin(\alpha w)\cos(\beta(d-w)) + \frac{\varepsilon_m}{\beta}\sin(\beta(d-w))\cos(\alpha w)\}$$

$$T_{21} = (i/k)\cdot\{\frac{\alpha}{\varepsilon_d}\sin(\alpha w)\cos(\beta(d-w)) + \frac{\beta}{\varepsilon_m}\sin(\beta(d-w))\cos(\alpha w)\}$$

$$T_{22} = \cos(\beta(d-w))\cos(\alpha w) - \frac{\varepsilon_m\alpha}{\varepsilon_d\beta}\sin(\beta(d-w))\sin(\alpha w)$$

D.2.2 Réseau D-périodique à 2 cavités

Pour une structure D-périodique comprenant : 2 fentes identiques, de largeur w et de constante diélectrique ε_d, et 2 strates (métalliques) de largeurs éventuellement différentes L_1 et L_2, de même constante ε_m. La période vaut donc $D = L_1 + L_2 + 2w$, et $T = M_{\varepsilon_d}(w)M_{\varepsilon_m}(L_1)M_{\varepsilon_d}(w)M_{\varepsilon_m}(L_2)$

$$\begin{aligned}
T_{11} = \;& \cos(\beta(L_1+L_2))\cdot\cos^2(\alpha w) \\
& +((\tfrac{\beta\varepsilon_d}{\varepsilon_m\alpha})^2\sin(\beta L_1)\sin(\beta L_2) - \cos(\beta L_1)\cos(\beta L_2))\cdot\sin^2(\alpha w) \\
& -(\tfrac{\beta\varepsilon_d}{\varepsilon_m\alpha}\sin(\beta(L_1+L_2)) + \tfrac{\varepsilon_m\alpha}{\beta\varepsilon_d}\cos(\beta L_1)\sin(\beta L_2) + \tfrac{\beta\varepsilon_d}{\varepsilon_m\alpha}\sin(\beta L_1)\cos(\beta L_2))\cdot\sin(\alpha w)\cos(\alpha w)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
T_{12}/(ik) = \;& \tfrac{\varepsilon_m}{\beta}\sin(\beta(L_1+L_2))\cdot\cos^2(\alpha w) \\
& -\tfrac{\varepsilon_d}{\alpha}(\tfrac{\beta\varepsilon_d}{\alpha\varepsilon_m}\cos(\beta L_1)\sin(\beta L_2) + \tfrac{\alpha\varepsilon_m}{\beta\varepsilon_d}\sin(\beta L_1)\cos(\beta L_2))\cdot\sin^2(\alpha w) \\
& +\tfrac{\varepsilon_d}{\alpha}(2\cos(\beta L_1)\cos(\beta L_2) - [1+(\tfrac{\alpha\varepsilon_m}{\beta\varepsilon_d})^2]\sin(\beta L_1)\sin(\beta L_2))\cdot\sin(\alpha w)\cos(\alpha w)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
T_{21}\cdot(\frac{k}{i}) = \;& \tfrac{\beta}{\varepsilon_m}\sin(\beta(L_1+L_2))\cdot\cos^2(\alpha w) \\
& -\tfrac{\alpha}{\varepsilon_d}(\tfrac{\alpha\varepsilon_m}{\beta\varepsilon_d}\cos(\beta L_1)\sin(\beta L_2) + \tfrac{\beta\varepsilon_d}{\alpha\varepsilon_m}\sin(\beta L_1)\cos(\beta L_2))\cdot\sin^2(\alpha w) \\
& +\alpha(2\cos(\beta L_1)\cos(\beta L_2) - [1+(\tfrac{\beta\varepsilon_d}{\alpha\varepsilon_m})^2]\sin(\beta L_1)\sin(\beta L_2))\cdot\sin(\alpha w)\cos(\alpha w)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
T_{22} = \;& \cos(\beta(L_1+L_2))\cdot\cos^2(\alpha w) \\
& +((\tfrac{\varepsilon_m\alpha}{\varepsilon_d\beta})^2\sin(\beta L_1)\sin(\beta L_2) - \cos(\beta L_1)\cos(\beta L_2))\cdot\sin^2(\alpha w) \\
& -(\tfrac{\varepsilon_m\alpha}{\varepsilon_d\beta}\sin(\beta(L_1+L_2)) + \tfrac{\beta\varepsilon_d}{\varepsilon_m\alpha}\cos(\beta L_1)\sin(\beta L_2) + \tfrac{\varepsilon_m\alpha}{\beta\varepsilon_d}\sin(\beta L_1)\cos(\beta L_2))\cdot\sin(\alpha w)\cos(\alpha w)
\end{aligned}$$

On vérifie qu'en prenant $L_2 = 0$, on retrouve[1] les formules d'un réseau simple avec des cavités larges de $2w$. On voit aussi qu'en prenant $w = 0$, on retombe sur les coefficients de la matrice de transfert d'une strate purement métallique, d'épaisseur L_1+L_2.

[1]Prendre $L_1 = 0$ ne peut pas marcher ici, puisque les cavités resteraient "séparées" par la strate L_2 *au sein* de la période (le choix de l'origine importe dans l'agencement du produit des matices de transfert, non commutables, donc dans le calcul des coefficients de T !)

D.3 Éléments des matrices χ et Υ

On a : $\chi_{nl} = \frac{1}{d}\int_0^d \overline{e_n(x)}\frac{X_l(x)}{\varepsilon(x)}dx = \frac{1}{\varepsilon_m d}\int_0^{d-w}\overline{e_n(x)}X_l(x)dx + \frac{1}{d\varepsilon_d}\int_{d-w}^{w}\overline{e_n(x)}X_l(x)dx$

Et d'autre part : $\Upsilon_{ln} = \overline{\frac{1}{d}\int_0^d \overline{e_n(x)}\frac{X_l^+(x)}{\bar{\varepsilon}(x)}dx}$

D.3.1 Réseau d-périodique à 1 cavité

$$\chi_{nl} = \frac{1}{d}[\frac{(I_1+I_2)}{\varepsilon_m} + \frac{(I_3+I_4)}{\varepsilon_d}] \quad \text{pour 1 cavité}$$

Les quantités I_1 à I_4 dépendent implicitement des indices l et n, et s'expriment de la manière suivante :

$$I_1 = \frac{(d-w)}{2}e^{i(\beta-k\gamma_n)\frac{(d-w)}{2}} \cdot [1+\frac{\varepsilon_m k}{\beta}V_0] \cdot sinc[(\beta-k\gamma_n)(d-w)/2]$$

$$I_2 = \frac{(d-w)}{2}e^{-i(\beta+k\gamma_n)\frac{(d-w)}{2}} \cdot [1-\frac{\varepsilon_m k}{\beta}V_0] \cdot sinc[(\beta+k\gamma_n)(d-w)/2]$$

$$I_3 = \frac{w}{2}e^{i(\alpha-k\gamma_n)\frac{w}{2}} \cdot [U_1+\frac{k\varepsilon_d}{\alpha}V_1] \cdot sinc[(\alpha-k\gamma_n)w/2] \cdot e^{-ik\gamma_n(d-w)}$$

$$I_4 = \frac{w}{2}e^{-i(\alpha+k\gamma_n)\frac{w}{2}} \cdot [U_1-\frac{k\varepsilon_d}{\alpha}V_1] \cdot sinc[(\alpha+k\gamma_n)w/2] \cdot e^{-ik\gamma_n(d-w)}$$

J'ai omis l'indice l portant sur les termes α, β, V_0, U_1 et V_1, pour plus de clarté.

$$\Rightarrow \Upsilon_{ln} = \overline{\frac{1}{d}[\frac{(I_1^+ + I_2^+}{\bar{\varepsilon_m}} + \frac{(I_3^+ + I_4^+}{\bar{\varepsilon_d}}]} \quad \text{pour 1 cavité}$$

Où $I_1^+, ..., I_4^+$ contiennent cette fois $\overline{\Lambda^2}$, les $\bar{\varepsilon}$, α^+, β^+, V_0^+, U_1^+ et V_1^+.
Bien entendu, le calcul de ces derniers termes n'a pas lieu d'être si $\varepsilon(x)$ est réelle (puisqu'alors on a directement $\Upsilon_{ln} = \overline{\chi_{nl}}$).

D.3.2 Réseau D-périodique à 2 cavités

Dans le même genre : $\chi_{nl} = \frac{1}{D}[\frac{(I_1+I_2+I_5+I_6)}{\varepsilon_m} + \frac{(I_3+I_4+I_7+I_8)}{\varepsilon_d}]$

Avec ici : $I_1 = \frac{L_1}{2}e^{i(\beta-k\gamma_n)L_1/2} \cdot [1+\frac{\varepsilon_m k}{\beta}V_0] \cdot sinc[(\beta-k\gamma_n)L_1/2]$

$$I_2 = \frac{L_1}{2} e^{-i(\beta+k\gamma_n)L_1/2} \cdot [1 - \frac{\varepsilon_m k}{\beta} V_0] \cdot sinc[(\beta + k\gamma_n)L_1/2]$$

$$I_3 = \frac{w}{2} e^{i(\alpha-k\gamma_n)\frac{w}{2}} \cdot [U_1 + \frac{k\varepsilon_d}{\alpha} V_1] \cdot sinc[(\alpha - k\gamma_n)w/2] \cdot e^{-ik\gamma_n L_1}$$

$$I_4 = \frac{w}{2} e^{-i(\alpha+k\gamma_n)\frac{w}{2}} \cdot [U_1 - \frac{k\varepsilon_d}{\alpha} V_1] \cdot sinc[(\alpha + k\gamma_n)w/2] \cdot e^{-ik\gamma_n L_1}$$

$$I_5 = \frac{L_2}{2} e^{i(\beta-k\gamma_n)L_2/2} \cdot [U_2 + \frac{\varepsilon_m k}{\beta} V_2] \cdot sinc[(\beta - k\gamma_n)L_2/2] e^{-ik\gamma_n(L_1+w)}$$

$$I_6 = \frac{L_2}{2} e^{-i(\beta+k\gamma_n)L_2/2} \cdot [U_2 - \frac{\varepsilon_m k}{\beta} V_2] \cdot sinc[(\beta + k\gamma_n)L_2/2] e^{-ik\gamma_n(L_1+w)}$$

$$I_7 = \frac{w}{2} e^{i(\alpha-k\gamma_n)\frac{w}{2}} \cdot [U_3 + \frac{k\varepsilon_d}{\alpha} V_3] \cdot sinc[(\alpha - k\gamma_n)w/2] \cdot e^{-ik\gamma_n(L_1+w+L_2)}$$

$$I_8 = \frac{w}{2} e^{-i(\alpha+k\gamma_n)\frac{w}{2}} \cdot [U_3 - \frac{k\varepsilon_d}{\alpha} V_3] \cdot sinc[(\alpha + k\gamma_n)w/2] \cdot e^{-ik\gamma_n(L_1+w+L_2)}$$

$$\text{Enfin,} \quad \Upsilon_{ln} = \overline{\frac{1}{D}[\frac{(I_1^+ + I_2^+ + I_5^+ + I_6^+}{\bar{\varepsilon_m}} + \frac{(I_3^+ + I_4^+ + I_7^+ + I_8^+}{\bar{\varepsilon_d}}]}$$

D.3.3 Calcul des éléments de Ω

Dans le cas du réseau simple d-périodique à 1 cavité, on a :

$$\Omega_{pl} = \frac{1}{d} \int_0^d \overline{X_p^+(x)} \frac{X_l(x)}{\varepsilon(x)} dx = \frac{1}{\varepsilon_m d} \int_0^{d-w} \overline{X_p^+(x)} X_l(x) dx + \frac{1}{d\varepsilon_d} \int_{d-w}^{w} \overline{X_p^+(x)} X_l(x) dx$$

Contrairement au cas du calcul des termes de χ et Υ, j'ai opté ici pour une intégration numérique directe, par l'emploi de la méthode de Simpson haute résolution (dite méthode des paraboles, qui ne peut qu'être bien adaptée pour des fonctions propres de type trigonométrique). On rappelle qu'elle consiste à évaluer l'intégrale d'une fonction continue f donnée, sur un intervalle $[a, b]$, par une somme finie telle que :

$$\int_a^b f(x)dx = \frac{b-a}{3N} \cdot [f(a) + \sum_{j=1}^{N-1} c_j \cdot f(a + j\frac{b-a}{N}) + f(b)]$$

$$\text{Où } N \text{ est un entier pair, et} \quad c_j = \left| \begin{array}{ll} 4 & \text{si } j \text{ est impair} \\ 2 & \text{si } j \text{ est pair} \end{array} \right.$$

N doit être pris suffisament grand pour que la convergence vers la vraie valeur de l'intégrale soit bien assurée. Afin d'optimiser la résolution et la rapidité du calcul, à N fixé, la discrétisation et la sommation est appliquée simultanément sur chaque strate de la structure (*i.e.* sur $[0, d-w]$ et sur $[d-w, d]$) et non sur la période prise dans son ensemble, de sorte que :

$$\begin{aligned} \Omega_{pl} = \; & \overline{X_p^+}(0) X_l(0) \cdot \tfrac{\delta_1}{\varepsilon_m} + \overline{X_p^+}(d-w) X_l(d-w) \cdot \tfrac{\delta_2}{\varepsilon_d} \\ & + \textstyle\sum_{j=1}^{N-1} c_j \cdot [\overline{X_p^+}(j \cdot \delta_1) X_l(j \cdot \delta_1) \cdot \tfrac{\delta_1}{\varepsilon_m} + \overline{X_p^+}(d - w + j \cdot \delta_2) X_l(d - w + j \cdot \delta_2) \cdot \tfrac{\delta_2}{\varepsilon_d}] \\ & + \overline{X_p^+}(d-w) X_l(d-w) \cdot \tfrac{\delta_1}{\varepsilon_m} + \overline{X_p^+}(d) X_l(d) \cdot \tfrac{\delta_2}{\varepsilon_d} \end{aligned}$$

avec $\delta_1 = \frac{d-w}{3Nd}$ et $\delta_2 = \frac{w}{3Nd}$.

Prendre N de l'ordre de quelques centaines suffit largement et le calcul informatique est quasi-immédiat. Le procédé est surtout avantageux pour le réseau à 2 cavités.

D.4 Considérations annexes sur les valeurs propres Λ^2

La démonstration pour la polarisation TE provient de Suratteau *et al* ([2]). Je l'ai complètée en polarisation TM. Considérons l'égalité $\mathcal{L}_x u = \Lambda^2 u$ et effectuons-en la projection suivante :

$< u|\mathcal{L}u >= \Lambda^2 < u|u >$ où $< | >$ désigne le produit interne défini en page 142

Si on a affaire à un réseau simple d-périodique, une intégration par parties conduit alors aux relations générales :

$$\int_0^d \frac{1}{\varepsilon(x)}|u'(x)|^2 dx = \int_0^d (k^2 - \frac{\Lambda^2}{\varepsilon(x)})|u(x)|^2 dx \quad \text{en polarisation TM}$$

$$\int_0^d |u'(x)|^2 dx = \int_0^d (\varepsilon(x)k^2 - \Lambda^2)|u(x)|^2 dx \quad \text{en polarisation TE}$$

Notons I_1 l'intervalle pour lequel $\varepsilon(x) = \varepsilon$ et I_2 l'intervalle pour lequel $\varepsilon(x) = \varepsilon_d$.

$$\frac{1}{\varepsilon_m}\int_{I_1} |u'|^2 + \frac{1}{\varepsilon_d}\int_{I_2} |u'|^2 = (k^2 - \frac{\Lambda^2}{\varepsilon_m})\int_{I_1} |u|^2 + (k^2 - \frac{\Lambda^2}{\varepsilon_d})\int_{I_2} |u|^2 \quad \text{en pol. TM}$$

$$\int_{I_1 \cup I_2} |u'|^2 = (\varepsilon_m k^2 - \Lambda^2)\int_{I_1} |u|^2 + (k^2\varepsilon_d - \Lambda^2)\int_{I_2} |u|^2 \quad \text{en pol. TE}$$

Comme $\varepsilon_d > 0$, on en déduit le résultat général suivant (un raisonnement par l'absurde permet de s'en convaincre) :

En <u>polarisation TE</u>, ou quand <u>$\varepsilon_m > 0$ en polarisation TM</u>, $\boxed{(\Lambda/k)^2 \leq max(\varepsilon_d, \varepsilon_m)}$

En revanche, rien ne permet de dire qu'en TM <u>avec $\varepsilon < 0$</u>, la valeur Λ^2 soit bornée par une valeur supérieure déterminée (ce qui est cohérent avec le fait que Λ peut être n'importe quel vecteur d'onde appartenant à la courbe de dispersion des plasmons de surface des parois verticales). Toutefois, dans le cas du métal parfait ($\varepsilon_m = -\infty$), on peut établir, puisque le champ électromagnétique est nécessairement nul sur I_1, que $\Lambda^2 \leq (n_d k)^2$.

[2] J.Optics (Paris), **14**, 273 (1983).

D.5 Comparaison de simulations obtenues *via* différentes méthodes numériques

Cette section complémentaire se propose de confronter ce que l'exploitation de la méthode modale exacte donne par rapport à ce qu'on obtient à travers une autre méthode numérique. J'ai choisi un exemple de simulation publié dans la littérature par Astilean *et al*[3]. Dans cet article, les auteurs ont calculé le spectre de transmission d'un réseau lamellaire en argent ayant des cavités de largeur sub-longueur d'onde, *via* la méthode RCWA (pour *Rigourous Coupled-Wave Analysis*[4]), qui requiert le dévelopement des champs, et de la fonction diélectrique, en séries de Fourier. Cette simulation a d'ailleurs été confrontée avec succès à ce que donne la méthode FDTD (*Finite Domain Time Différence*), exploitée par Baida et Van Labeke[5].

La Figure suivante permet de comparer les spectres de réponse du réseau en argent, calculés, en haut, par la méthode RCWA dans l'article d'Astilean *et al*, et, au milieu, par la méthode modale. Les pics de transmission sont due aux résonances Fabry-Perot. Les spectres obtenus par les deux méthodes se trouvent en très bon accord.

Toutefois, Astilean *et al* ont pris la permittivité de l'argent tabulée dans un papier de Johnson et Christy[6] datant de 1972. Pour comparer précisément ce que donne la méthode modale, il m'a fallu reprendre cette table de valeurs. Cependant, tout au long de la thèse, nous nous référons systématiquement aux données plus récentes du *Handbook* de Palik[7]. Or la partie imaginaire de la permittivité relative ε_{Ag} est presque 4 fois plus grande dans le *Handbook* que dans les tables de Johnson et Christy, ce qui n'est pas sans impact. Afin de voir la différence que cela implique, j'ai calculé (toujours par la méthode modale) le spectre de transmission avec la permittivité du Handbook. Ce spectre est en bas de la Figure ; il a été calculé avec, et sans absorption.

On constate : i) d'une part, une moins bonne transmission en métal réel, liée à une plus forte conductivité du métal (ici la profondeur des cavités est relativement grande $h = 1.8\mu m$, ce qui implique un amortissement notable de l'onde guidée le long des parois verticales.), ii) d'autre part, un léger décalage fréquentiel des résonances vers les basses fréquences (grandes longueurs d'onde), qui provient de ce que $|\Re(\varepsilon_{Ag})|$ est un peu plus petit dans le *Handbook*.

Le choix des sources de valeurs des constantes diélectriques peut donc avoir des conséquences importantes quand il s'agit d'étudier avec exactitude des phénomènes sensibles à l'absorption des matériaux.

[3]S.Astilean, Ph.Lalanne, M.Palamaru, Optics Communications, **175**, 265-273 (2000).

[4]P. Lalanne et G.M. Morris, J.Opt.Soc.Am. A 13, 779 (1996). "Highly improved convergence of the coupled-wave method for TM polarization".

[5]F.I. Baida et D. Van Labeke, Phys.Rev.B, **67**, 155314 (2003). "Three-dimensional structures for enhanced tansmission through a metallic film : annular aperture arrays".

[6]Johnson et Christy, Phys.Rev.B, **6**, 4370 (1972). "Optical Constants of the Noble Metals".

[7]E.D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, New York, 1985).

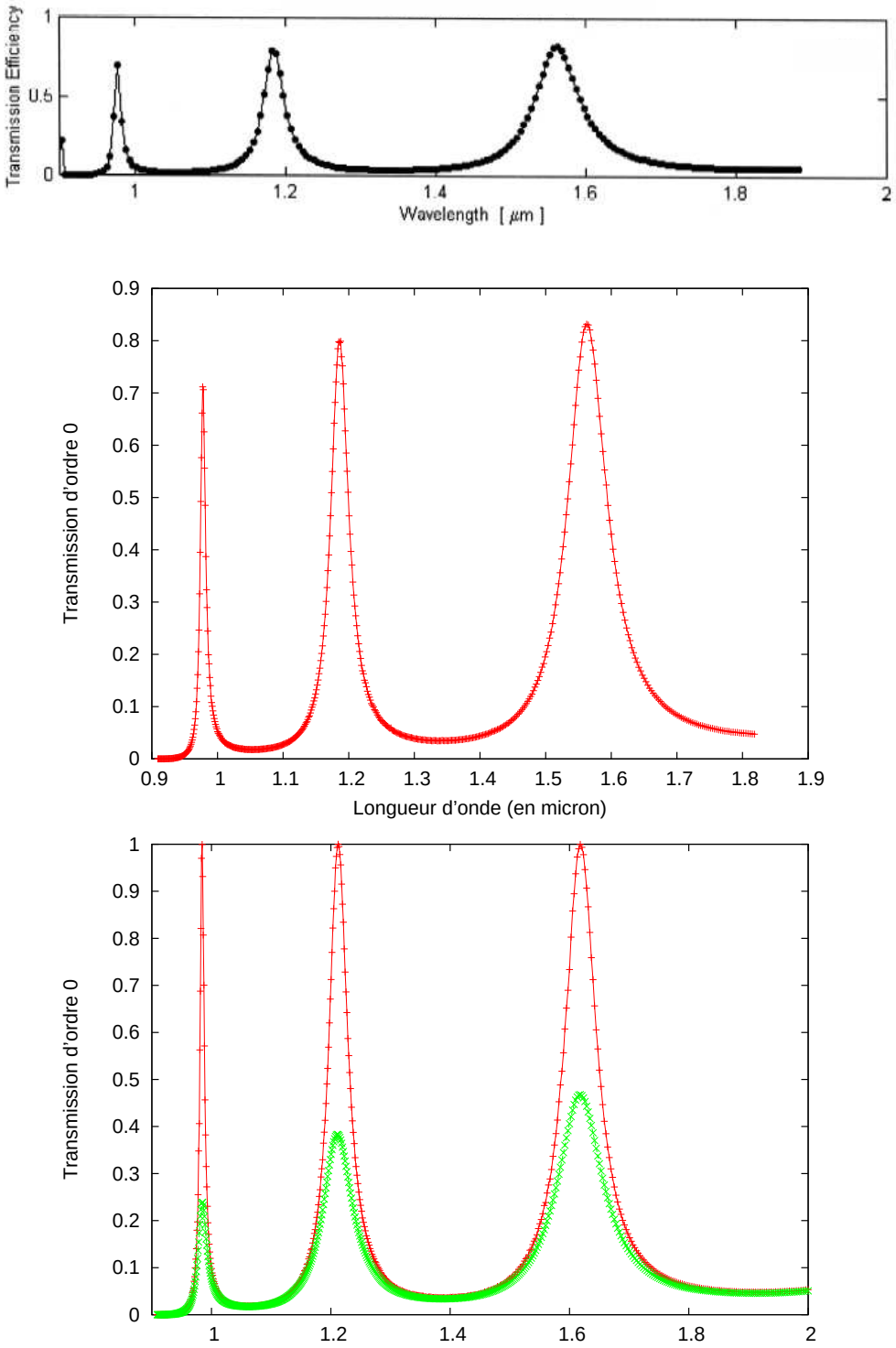


FIG. D.1 – Spectres de la transmission spéculaire ($T_0T_0^*$) d'un réseau d'argent à cavités ouvertes, paramétré par $d = 900nm$, $w = 90nm$ et $h = 1.8\mu m$, à $\theta = 0$. **En haut :** simulation par RCWA (voir texte), avec les valeurs de ε_{Ag} établies par Johnson et Christy. **Au milieu :** par la méthode modale, avec le même ε_{Ag}. **En bas :** encore par la méthode modale, mais avec la permittivité de l'argent référencée dans le *Handbook* de E.Palik : en *rouge* sans absorption (ε réelle) et en *vert* avec absorption (ε complexe).

D.6 Restriction unimodale à partir de la méthode exacte

Le but de cette section est d'expliciter analytiquement les coefficients d'amplitude a_0 et b_0 du mode fondamental d'un réseau d-périodique simple, à une cavité sub-longueur d'onde par période ([8]), en ne retenant, dans le développement modal exact, que les termes liés au fondamental (approximation unimodale). Les coefficients d'excitation (a_l, b_l) de chaque mode propre l du réseau sont définis en page 146 et vérifient l'équation matricielle globale de la page 148. Considérons la constante diélectrique $\varepsilon(x)$ du réseau purement *réelle* (positive ou négative). Alors le caractère auto-adjoint de la base des fonctions propres $X_l(x)$ implique que $\Upsilon =^t \bar{\chi}$, et il vient :

$$\begin{bmatrix} \Omega_{00} +^t \bar{\chi}_{n0}(\frac{1}{i\eta_n^I})\chi_{n0}\Delta_{00} & \Omega_{00} -^t \bar{\chi}_{n0}(\frac{1}{i\eta_n^I})\chi_{n0}\Pi_{00} \\ \Omega_{00}/n_{III} +^t \bar{\chi}_{n0}(\frac{1}{i\eta_n^{III}})\chi_{n0}\Delta_{00} & -\Omega_{00}/n_{III} +^t \bar{\chi}_{n0}(\frac{1}{i\eta_n^{III}})\chi_{n0}\Pi_{00} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} a_0 \\ b_0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 2\bar{\chi}_{00} \\ 0 \end{bmatrix}$$

Avec $\Delta_{00} = \frac{\Lambda_0}{k}\tan(\frac{h\Lambda_0}{2})$ et $\Pi_{00} = \frac{\Lambda_0}{k}\cot(\frac{h\Lambda_0}{2})$

S'agissant d'un réseau purement en réflexion, on peut supposer que $\varepsilon_{III} \to -\infty$, c'est-à-dire que le milieu de transmission (région III) est complètement opaque. Ainsi, $\Omega_{00}/n_{III} = 0$ et il en découle immédiatement $b_0 = -\tan^2(\frac{h\Lambda_0}{2})a_0$. Il reste alors la relation suivante :

$$[\Omega_{00}(1-\tan^2(\tfrac{h\Lambda_0}{2})) + (2\Lambda_0/k)\tan(\tfrac{h\Lambda_0}{2}) \cdot \textstyle\sum_n \frac{|\chi_{n0}|^2}{i\eta_n^I}] \cdot a_0 = 2\bar{\chi}_{00}$$

Or $\tan(2x) = 2\tan(x)/(1-\tan^2(x))$, d'où :

$$[\cot(h\Lambda_0) + n_{eff} \cdot \sum_n \frac{|\chi_{n0}|^2}{i\Omega_{00}\eta_n^I}] \cdot a_0 \tan(\frac{h\Lambda_0}{2}) = \bar{\chi}_{00}/\Omega_{00} \tag{D.1}$$

Avec $n_{eff} = \Lambda_0/k$ l'indice effectif du mode fondamental.

Cas du Métal

• Si le réseau à cavités sub-longueur d'onde est constitué d'un métal parfait, $\Lambda_0 = n_d k$ et la fonction propre du mode fondamental se réduit à une simple distribution "porte" (unitaire dans la cavité, nulle dans le métal). On montre alors sans difficulté que $\Omega_{00} = w/(d \cdot \varepsilon_d)$ et $\chi_{n0} = \Omega_{00} \cdot sinc(kw\gamma_n/2)$. On retrouve dans (D.1) la réponse habituelle d'une cavité à parois parfaitement réflectrices, dans le cadre de la restriction unimodale[9].

[8] On rappelle qu'il y a **deux modes guidés** (symétrique et antisymétrique) dans un réseau à 2 cavités/période, comme on l'a vu au Chapitre 7. La restriction, cette fois, bi-modale, pour ce système, reste encore difficile à traiter analytiquement. Chaque mode guidé étant associé à un vecteur de propagation $\vec{k}_y$ différent, l'indice effectif de cavité ne serait donc plus défini.

[9] A ceci près que cette formule ne tient évidemment pas compte de la contribution des ondes de surface horizontale, contribution habituellement incluse dans le terme d'impédance Z, d'après la méthode modale restreinte.

• Revenons au métal réel, avec $\varepsilon_m << 0$ (réelle), et faisons l'hypothèse que la fonction propre du fondamental reste très proche de la distribution porte évoquée au paragraphe précédent, de sorte que le terme $\Omega_{00} \approx w/(d\varepsilon_d)$. En incidence *normale* (pour simplifier), on trouve :

$$[a_0 \cdot \tan(n_{eff}kh/2)]^{-1} \approx \cot(n_{eff}kh) - i \cdot (\frac{n_{eff}}{\varepsilon_d})\frac{w}{d}\sum_{n=-\infty}^{+\infty}\frac{sinc^2(n\pi w/d)}{\sqrt{1-(n\lambda/d)^2}}$$

Avec $n_{eff} = \Lambda_0/k \approx \sqrt{1+\frac{2}{kw\sqrt{|\varepsilon(k)|}}}$ pour $d >> w$.

On voit apparaître la différence essentielle qui existe entre le cas de parois de cavité en métal parfait et le cas de parois verticales en métal réel (ε_m finie), à fonction propre similaire : la présence d'un indice effectif sensible au caractère sub-longueur d'onde ($kw << 1$) dans les coefficients de champ électromagnétique.

La résonance de cavité apparaît quand la partie réelle du dénominateur de a_0 (donc aussi de b_0) vaut zéro. Dans le régime $\lambda >> d$, cette condition correspond à l'annulation du terme

$$\cot(n_{eff}kh) - 2(\frac{n_{eff}}{\varepsilon_d})\frac{w}{d}\sum_{n=1}^{+\infty}\frac{sinc^2(n\pi w/d)}{\sqrt{(n\lambda/d)^2-1}} \approx \cot(n_{eff}kh) + \frac{n_{eff}}{\varepsilon_d}\frac{kw}{\pi}(\ln(2\pi w/d) - 3/2)$$

Ce qui conduit à l'égalité : $n_{eff}kh = \frac{\pi}{2} - \arctan[\frac{kwn_{eff}}{\pi\varepsilon_d}(\frac{3}{2} - \ln(\frac{2\pi w}{d}))]$

Comme $lim_{w\to 0}(n_{eff}w) = 0$, et $lim_{w\to 0}n_{eff}w\ln(w) = 0$, *le lieu de la résonance* est approximativement donné par $\cot(n_{eff}kh) \approx 0$ (attention, n_{eff} dépend implicitement de λ). On en tire parallèlement $\boxed{b_0 = -a_0}$. Dans l'hypothèse où $kw\sqrt{|\varepsilon_m(\omega)|} >> 1$ (kw est assez petit devant 1 mais ε_m relativement grand en module), la condition de résonance Fabry-Perot est donnée par :

$$k = \pi/(2hn_{eff}) \approx k_{FP}(1 - \frac{1}{k_{FP}w\sqrt{|\varepsilon_m|}}) \quad \text{avec } k_{FP} = \frac{\pi}{2hn_d}$$

en développant au premier ordre la racine de n_{eff}.

D'où le résultat plus explicite : $\boxed{k \approx \frac{\pi}{2hn_d} - \frac{1}{w\sqrt{|\varepsilon_m(\omega)|}}}$.

L'amplitude de la résonance est bornée par la partie imaginaire du dénominateur de a_0, soit $(wn_{eff})/(d\varepsilon_d)$. Tous ces calculs sont corrects tant que $n_{eff}^2 << |\varepsilon_m|$.

Autour de la résonance, $\cot(n_{eff}kh) \approx n_{eff}h(k - k_{res})$ avec $k_{res} = \frac{\pi}{2h\ n_{eff}}$, et donc :

$$a_0 \approx \frac{1}{n_{eff}h} \cdot \frac{1}{(k_{res} - k) - i\frac{w}{hd\varepsilon_d}}$$

Enfin, d'après les équations de raccord écrites en sous-section 6.6.2, on trouve que, dans la cavité,
$E_x(y=0) \propto n_{eff} \cdot [-a_0 \tan(hkn_{eff}/2) + b_0 \cot(hkn_{eff}/2)] \approx -2\ n_{eff} a_0$,

soit $E_x(y=0) \approx -2\ n_{eff}\ a_0$ et, d'autre part, $H_z(y =_h) \approx 2a_0$.

Cas du Diélectrique

Dans le cas d'un réseau lamellaire diélectrique (ou cristal photonique 1D), il est difficile de trancher, car le mode fondamental n'est pas aussi prédominant par rapport aux autres modes, sa fonction propre n'a rien d'une distribution porte (elle est oscillante partout) et une estimation de Ω_{00} ou des χ_{n0} est donc hasardeuse.

On sait en tout cas que n_{eff} est borné, en valeur supérieure, par la plus grande constante diélectrique ε (de l'une ou de l'autre strate du réseau, toutes supérieures à 1 ici). L'existence de résonance du type Fabry-Perot est possible, avec un champ fort dans les portions diélectriques de plus grand indice optique.

* * *

Index

En complément de la Table des Matières

A
absorption 41, 53, 104, 197
Absorption Optique Anormale
(AOA) 183, 185-186, 188
acoustique 3, 222
adressage (de la lumière) 106, 112
anomalies de Wood 3, 51
Attenuated Total Reflection
(ATR) 13, 53-54
C
cavité 3, 14, 16
N-uplet 94-96
résonance de 3, 44-46, 186
sub-longueur d'onde 22
champ incident effectif 73, 83, 104
charge (distribution de)
12, 25, 27-28, 75, 196
commutation optique 87, 113
condensateur 75, 196
constante diélectrique 2
d'un métal 17, 217, 219
généralisée 217
de Lindhard 208
positive 11, 221
continuum 14, 19, 37, 136
convolution 40, 95, 224
couplage
antisymétrique/symétrique 25
(*voir aussi* mode)
en champ lointain 71, 81
en champ proche 72, 98, 104
opto-géométrique 4
voir aussi levée de dégénérescence
cristaux ioniques 215
D
développement modal 15
voir Table des Matières
diffusion 39, 79, 104
intégrale de 38, 229
Raman : *voir SERS*
dipôle (effectif) 27, 74-76, 98, 104
Dirac (peigne, delta) 38, 40
dispersion (courbe de)
plasmon de surface
interface plane 12, 24
réseau périodique 52
couplé 25-26, 194 (54)
modes propres 154, 157
modes excités 47, 52
E
effet
d'ouverture 48, 195
retardé 74, 234
de bascule 118
épaisseur de peau 217, 219, 91
équation(s)
de Helmoltz 14, 39, 129, 131
de Maxwell 2, 129, 237
aux valeurs propres (EVP) :
voir Table des Matières
excitation
coefficient (d') 38, 170
collective 4, 11
compétitive 69, 104, 108
individuelle (e-trou) 209
voir aussi incidence
F
Fabry-Pérot (résonateur de)
46, 48, 71, 180, 194, 228
facteur d'exaltation 47, 66
facteur de qualité 46, 79
fréquence de résonance
(formules) 46, 50, 52, 80, 195, 234
Fsolve (Maple) 155-156
H
Hot spot 5, 62, 68, 93
I
impédance de surface 33-34, 51, 135, 222

incidence
par onde évanescente 13, 53
à 2 ondes déphasées 83-84, 106
de Brewster 222
indice effectif
d'une cavité isolée 23, 35
d'une cavité en réseau 192-194, 244
régime "électrostatique" 205
indice diélectrique de cavité 196
K
Kronig-Penney (modèle de) 135
L
levée de dégénérescence
plasmons de paroi couplés 25
du mode Fabry-Pérot 71, 102, 104, 108
couplage cavité-cavité 137, 174, 177
Lightning rod effect 75, 208
M
matrice de transfert 133, 237
métal
"bon" 33, 217
parfait 21, 217
réel (de Drude) 17, 217, 219
Méthode Modale 6, 125
Restreinte (MMR), Exacte (MME) : *voir* Table des Matières
méthode
alternative 125, 242
homogène 148
hybride 148
mode propre *voir* Table des Matières
mode
collectif 96
coupure 22, 28, 221
de Brewster-Zenneck 215
de Zenneck-Sommerfeld 11
diffusé 19, 169
fondamental 22-23, 37, 136, 157, 174, 192 244
guidé 3, 22, 46, 174
lié 17, 221
pair/impair 19, 138, 166, 170
symétrique/antisymétrique 65, 74, 85, 98, 105, 118, 177, 179
voir aussi : Fabry-Pérot, résonance
N
nodal (axe ou plan) 27, 77
O
opérateur différentiel 130, 143
oscillateur amorti 46, 74-75
P
permittivité : *voir* constante diélectrique
pertes
par conduction 23, 217
radiatives 46, 53, 75, 78-79, 229
phase
diagramme (de) 84
d'extinction 87
quadrature de 88
plasmons : *voir* Table des Matières
point chaud : voir *hot spot*
polarisation (transverse) 12, 135, 221
profondeur
de pénétration 14, 168, 191, 205
différente (cavités) 111
projecteur (produit interne) 130, 142
R
Rayleigh
critère de 4, 89
développement de 3, 14, 39, 129
base de 37, 130
rayonnement (lobe de) 77
réflectivité 3, 41
réseau : *voir* Table des Matières
résonance (*voir aussi* mode)
de Fabry-Pérot *voir* Fabry-Pérot
de plasmon de surface 49, 51, 172, 202
forcée 3, 46, 51
hybride 52, 118-119, 180, 203
rupture de symétrie 68, 106-108
S
sub-radiance/super-radiance 81, 104
Surface Enhanced Raman Scattering (SERS) 4, 183-186, 209
T
transmission (résonante) 45, 54, 90, 181, 243
U
unimodale (restriction) 23, 37, 244
V
vecteur
excitation 64, 95, 132, 148
propre 65, 98, 102, 236

Localization and enhancement of light in sub-wavelength metallic structures.

This thesis presents theoretical works based on a modal approach, about the optical properties of metallic surfaces with rectangular grooves whose dimensions are smaller than the wavelength of the incident light. These surfaces show reflection anomalies related to local enhancements of the electromagnetic field, due to, in particular, Fabry-Pérot like resonances inside the grooves.

The problem of two near-field coupled sub-wavelength cavities is analysed. Hot spot phenomena occur, and we show how to control the localization of light at sub-wavelength scales. The results could find important applications : optical switching, quantitative light addressing, surface enhanced Raman scattering (SERS)... We also study the localization effects due to structural disorder : breaking the symmetry of periodic arrangements, different lighting configurations may appear, very sensitive to the excitation frequency. Some theoretical predictions are evidenced experimentally.

Finally, we deal with the case of very sub-wavelength lamellar gratings, in connection with the Abnormal Optical Absorption and the SERS effect observed for some rough metallic films. Giant enhancements of the electric field, calculated inside nano-cavities with the exact modal method, in the visible region, are explained by the excitation of surface plasmons-polaritons whose wave vectors are much larger than those of light.

Ce travail de thèse, essentiellement théorique et basé sur une approche modale, porte sur les propriétés optiques de surfaces métalliques comportant un certain nombre de gravures de profil rectangulaire dont les dimensions sont inférieures à la longueur d'onde de la lumière incidente. Ces surfaces présentent des anomalies de réflexion liées à des exaltations locales du champ électromagnétique, dues notamment à des résonances de type Fabry-Pérot à l'intérieur des sillons.

L'analyse du problème d'un couple de cavités sub-longueur d'onde, couplées en champ proche, montre comment on peut générer des "points chauds" et contrôler la localisation de la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde. Les applications sont de première importance : commutation optique, adressage quantitatif de la lumière, diffusion Raman exaltée en surface (SERS)... On s'intéresse également aux effets de localisations liés au désordre structurel : la rupture de symétrie d'un arrangement périodique génère différents jeux d'allumage des cavités, très sensibles à la fréquence d'excitation. Certaines prédictions théoriques sont étayées expérimentalement.

Enfin, le cas des réseaux lamellaires très fortement sub-longueur d'onde est examiné, en lien avec l'Absorption Optique Anormale et l'effet SERS observés sur certains films métalliques rugueux. Les exaltations géantes du champ électrique, calculées dans les nano-cavités par la méthode modale exacte, dans le domaine visible, s'expliquent par l'excitation de plasmons-polaritons de surface dont les vecteurs d'onde sont très supérieurs à ceux de la lumière.

Mots-clés : optronique, surface métallique, cavité sub-longueur d'onde, plasmon de surface, résonance Fabry-Pérot, méthode modale.