

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

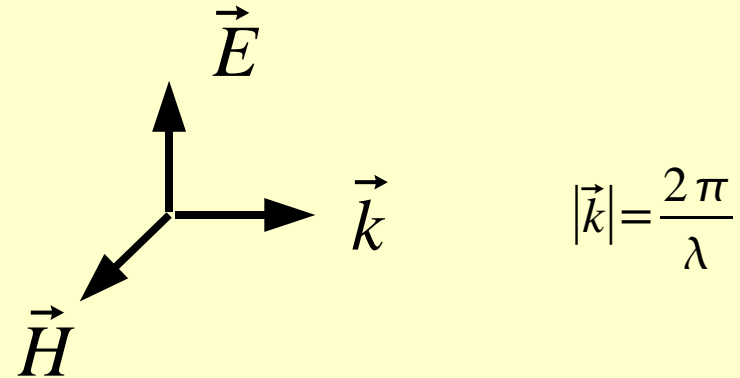
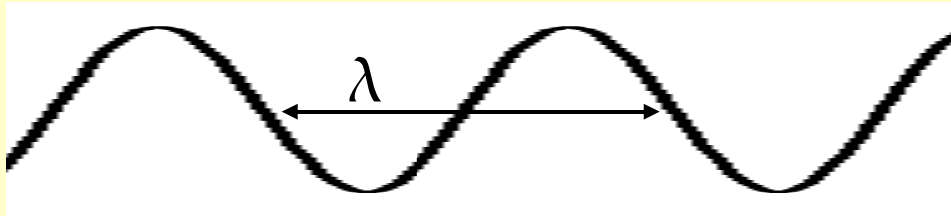
par Jérôme Le Perchec

22 Janvier 2007

Laboratoire d'Etudes des Propriétés Electroniques des Solides (LEPES-CNRS)

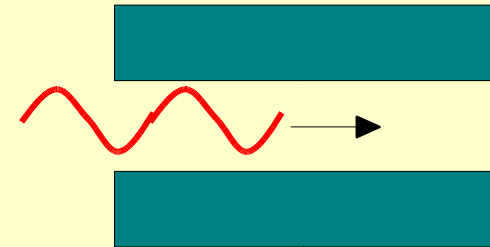
Equipe: Pascal Quémerais, Aude Barbara et Tomas Lopez-Rios

Introduction



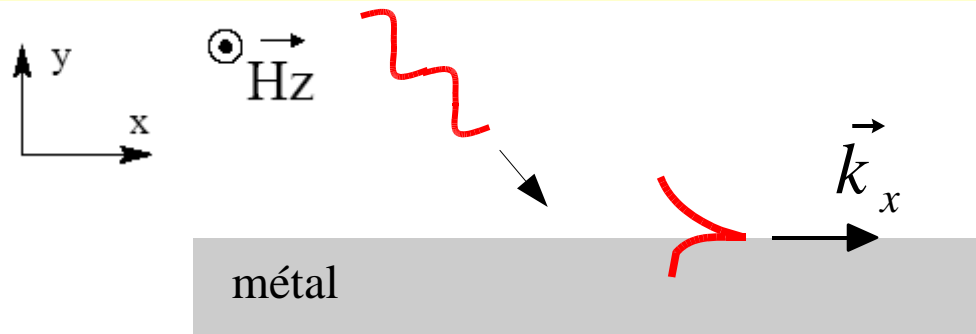
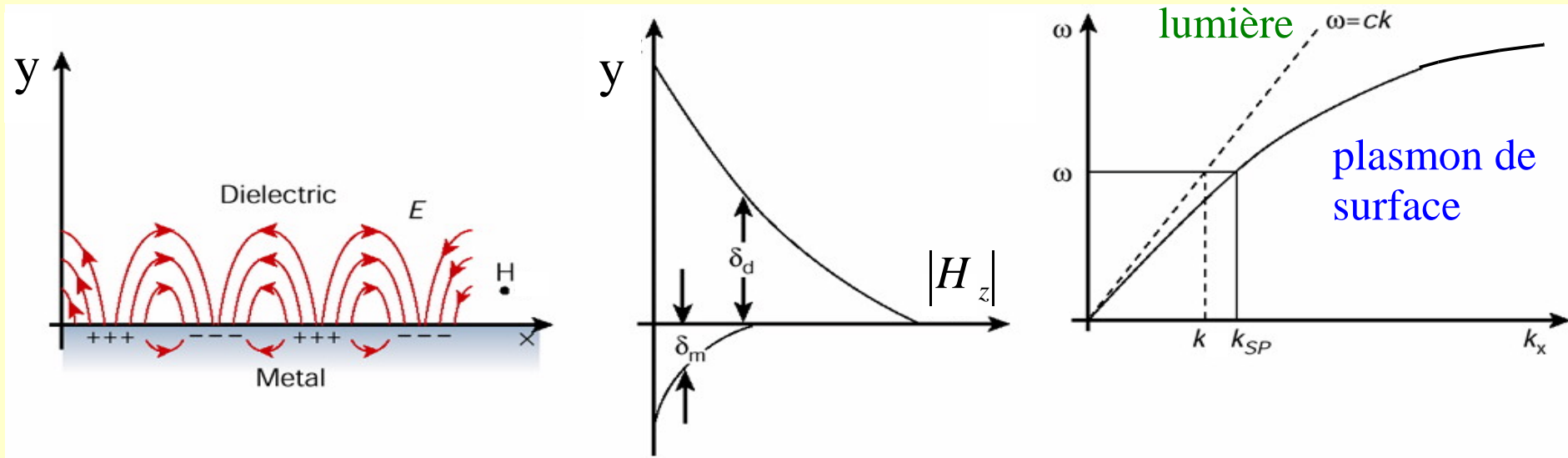
Limite de diffraction:

le confinement ou le guidage de la lumière est limité à des espaces de dimension supérieure à $\lambda/2$.



Interfaces métalliques: contournement possible de cette limite
=> rôle des plasmons de surface.

Le plasmon de surface

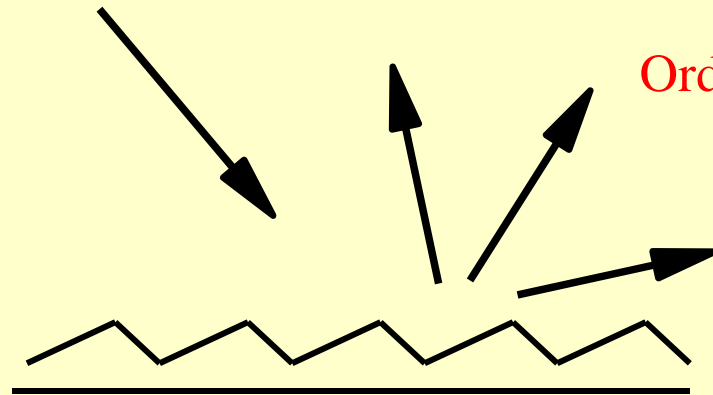


Couplage (en pol TM):

photon + plasmon
 \Rightarrow plasmon-polariton

Propagation de l'énergie lumineuse sur des structures métalliques, notamment dans des motifs **sub-longueur d'onde**

1-Réseau périodique



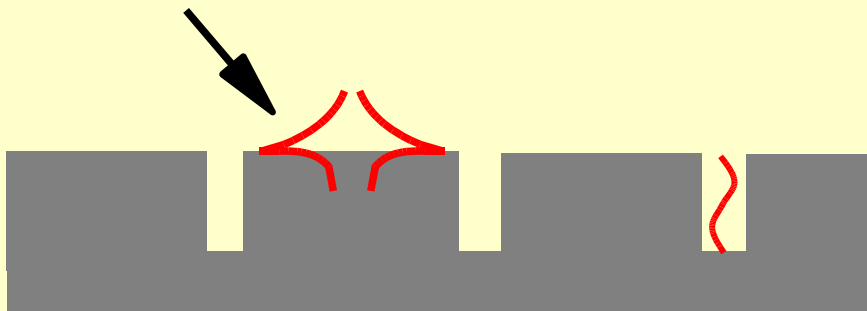
Ordres de diffraction

=> spectroscopie

réseau *métallique*:
existence d'*anomalies* de réflexion...

Wood (1902), Rayleigh (1907)

2-Structures métalliques



Résonances électromagnétiques
(plasmons de surface
ou résonance de cavité profonde)

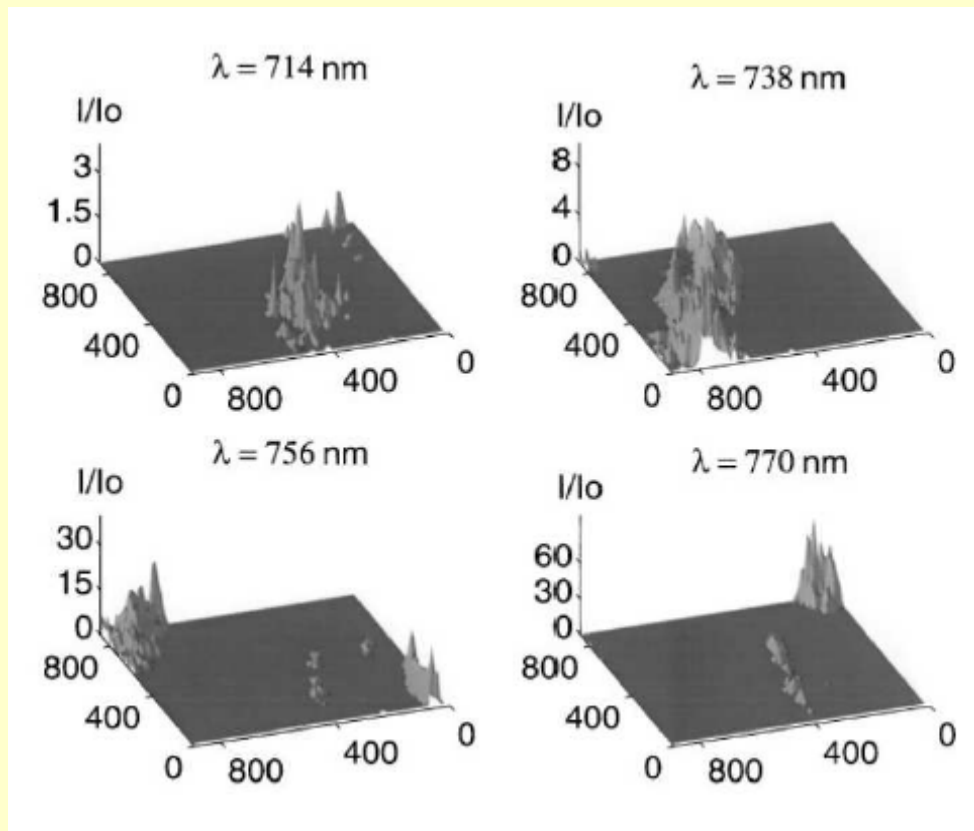
Fano (1941), Hessel & Oliner (1965)

3-Diffusion Raman exaltée en surface (SERS)

Fleischmann *et al* (1974)

Des molécules déposées sur une surface **métallique rugueuse** puis éclairées émettent un signal Raman très puissant

Exaltations du champ local
de *plusieurs milliers* (voir plus...)



Grésillon *et al* (1999)

Travaux expérimentaux

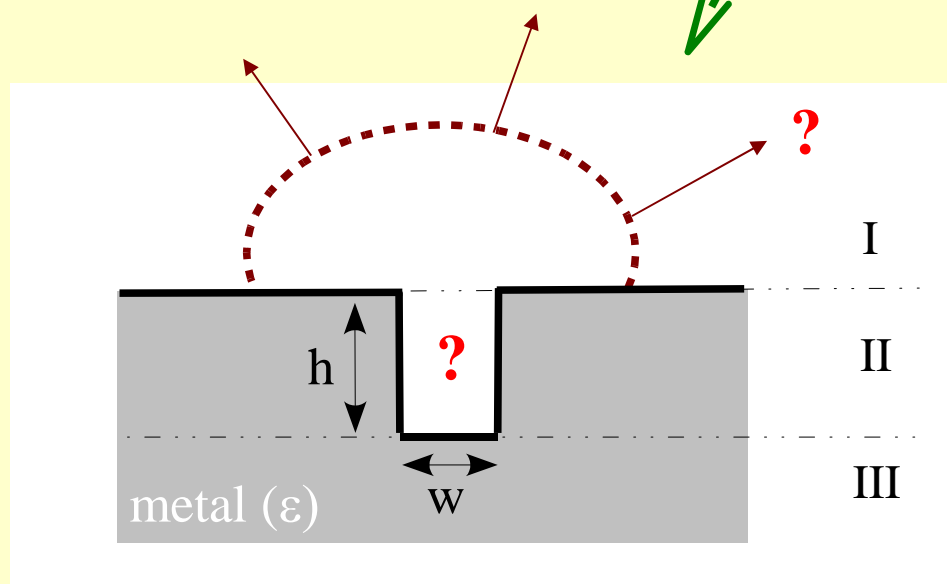
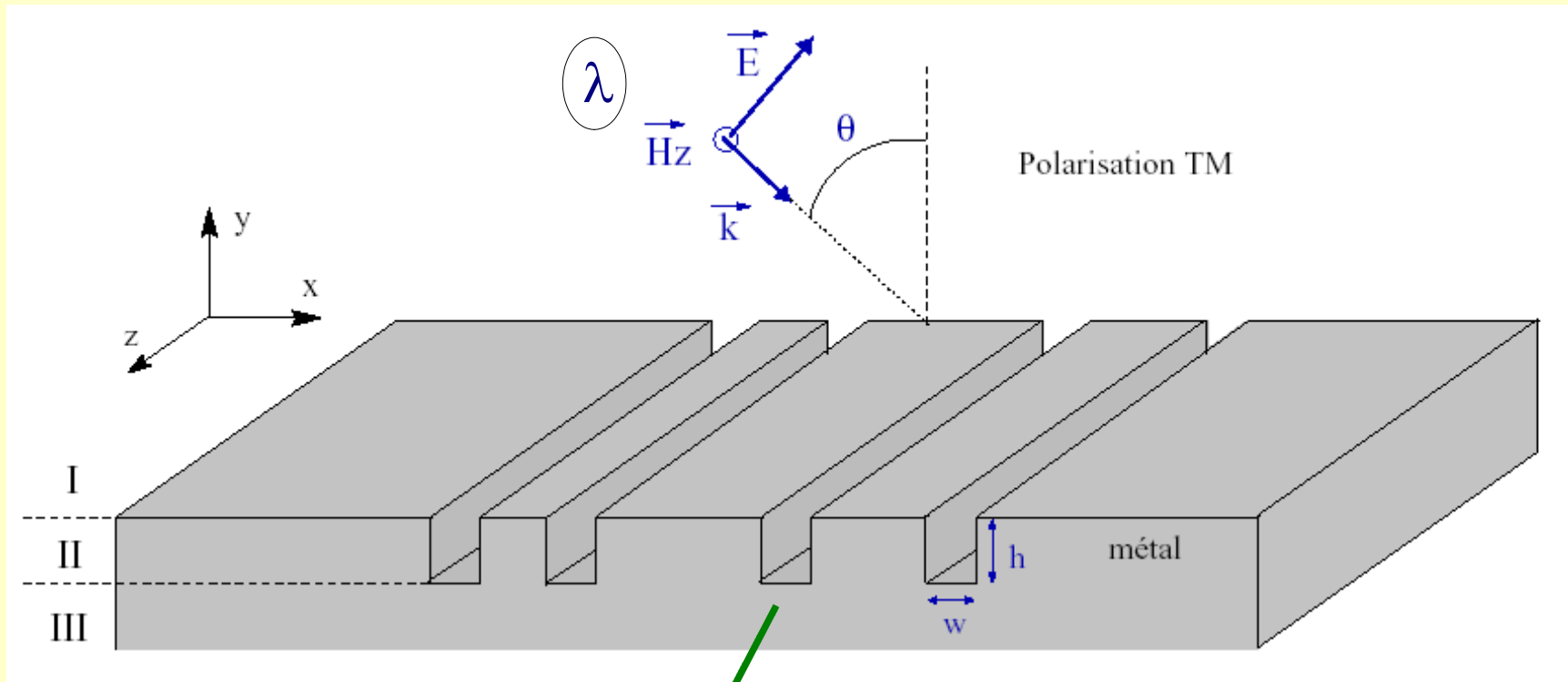
Phénomènes de *hot spot*
« points chauds »

sujet:

Localisations (spatiales) et exaltations (amplifications) de la lumière dans des structures métalliques d'échelle sub-longueur d'onde

=> Comprendre et maîtriser ces phénomènes électromagnétiques (applications directes en opto-électronique, spectroscopie, télécommunications...)

Problème électromagnétique



Polarisation TM: Il suffit de calculer le champ magnétique dans tout l'espace

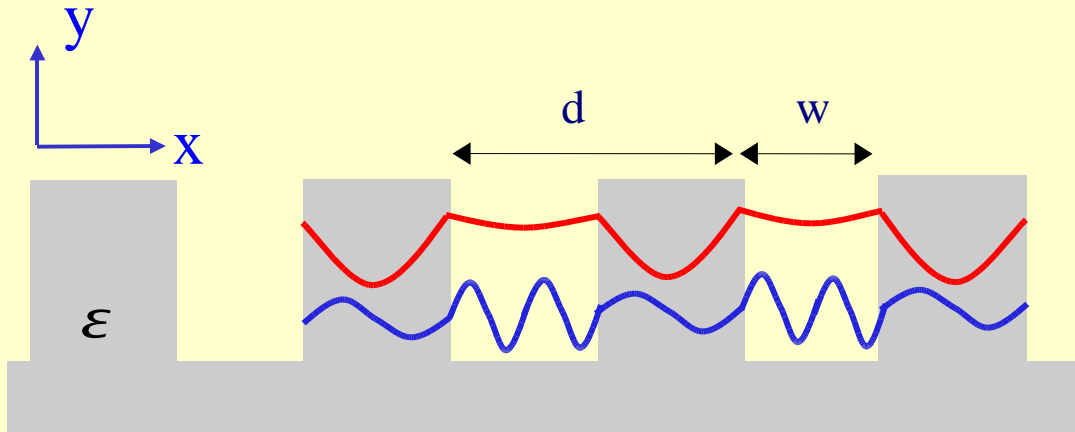
Expressions générales des champs + conditions aux limites (Maxwell)

=> *champ proche (amplitudes locales) et champ lointain (réflectivité) ?*

Méthode Modale Exacte (MME)

Botten *et al* (1981)

Sheng *et al* (1982)



Le champ peut s'écrire comme une combinaison linéaire de **fonctions (ou modes) propres** $X(x)$ chacune caractérisée par un **vecteur d'onde propre** $k_y = \Lambda$

$$H_z^{II}(x, y) = \sum_{l>0} X_l(x) \cdot [A_l e^{i\Lambda_l y} + B_l e^{-i\Lambda_l y}]$$

← **Développement MODAL**

On peut attribuer les phénomènes observés aux modes propres effectivement excités

Les Λ sont racines d'une **Equation aux Valeurs Propres (EVP)** :

$$\cos(\beta(d-w)) \cos(\alpha w) - \left[\frac{\alpha^2 \varepsilon^2 + \beta^2}{2\alpha\beta\varepsilon} \right] \sin(\beta(d-w)) \sin(\alpha w) = \cos(kd \sin \theta) \quad \text{avec}$$

$$\beta = \sqrt{k^2 \varepsilon - \Lambda^2}$$

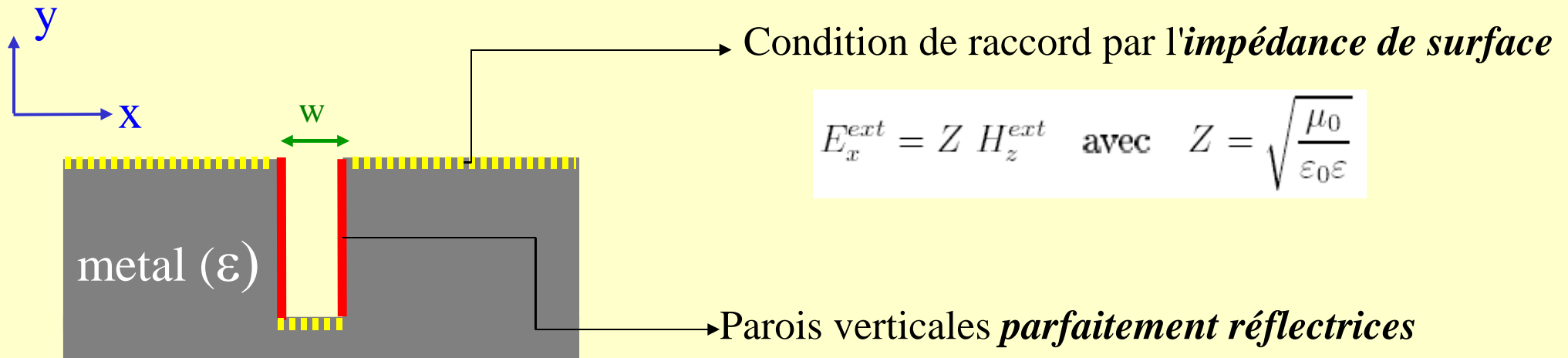
$$\alpha = \sqrt{k^2 - \Lambda^2}$$

Difficultés majeures quand ε complexe (métal absorbant) :

- 1) base des X_l **non-orthogonale** (unicité du développement modal)
- 2) équation à racines **complexes**

Méthode Modale **Restreinte** (MMR)

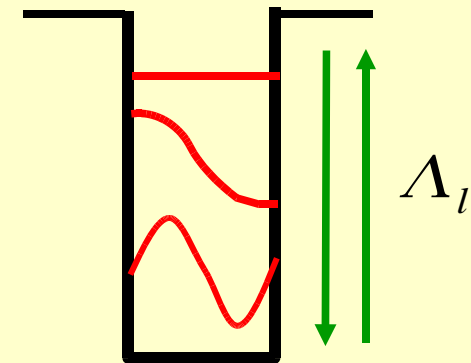
Wirgin & Maradudin (1986)
Lopez-Rios *et al* (1998)



$$E_x^{ext} = Z H_z^{ext} \quad \text{avec} \quad Z = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0 \epsilon}}$$

$$H_z^{II} = \sum_{l=0}^{+\infty} \cos\left[\frac{l\pi}{w}\left(x + \frac{w}{2}\right)\right] (A_l e^{i\Lambda_l y} + B_l e^{-i\Lambda_l y})$$

avec $\Lambda_l = k \sqrt{1 - \left(\frac{l\lambda}{2w}\right)^2}$



Si $w \ll \lambda \Rightarrow$ seul $\Lambda_0 \in \mathcal{R}$

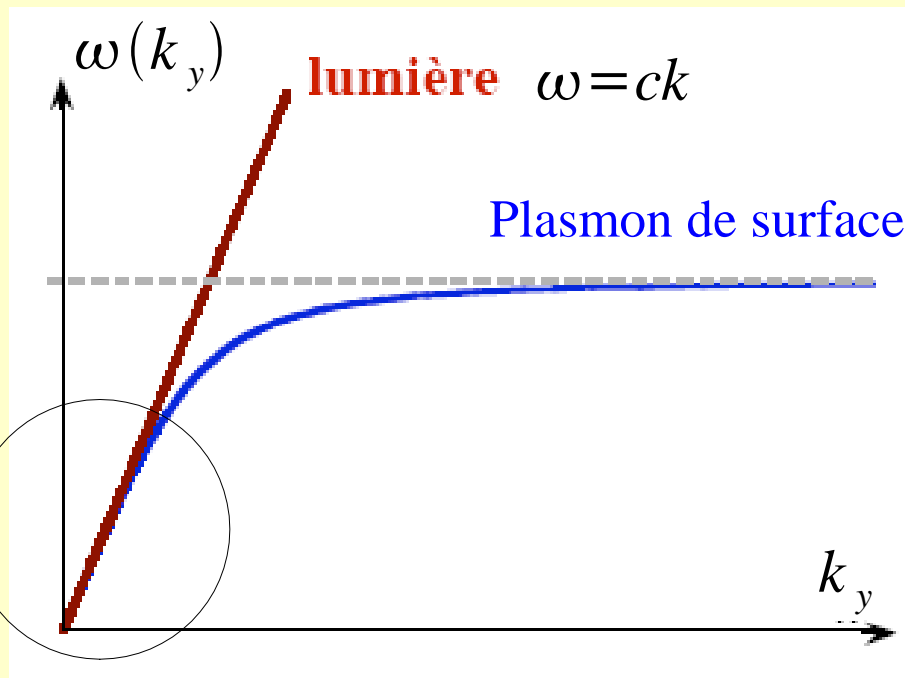
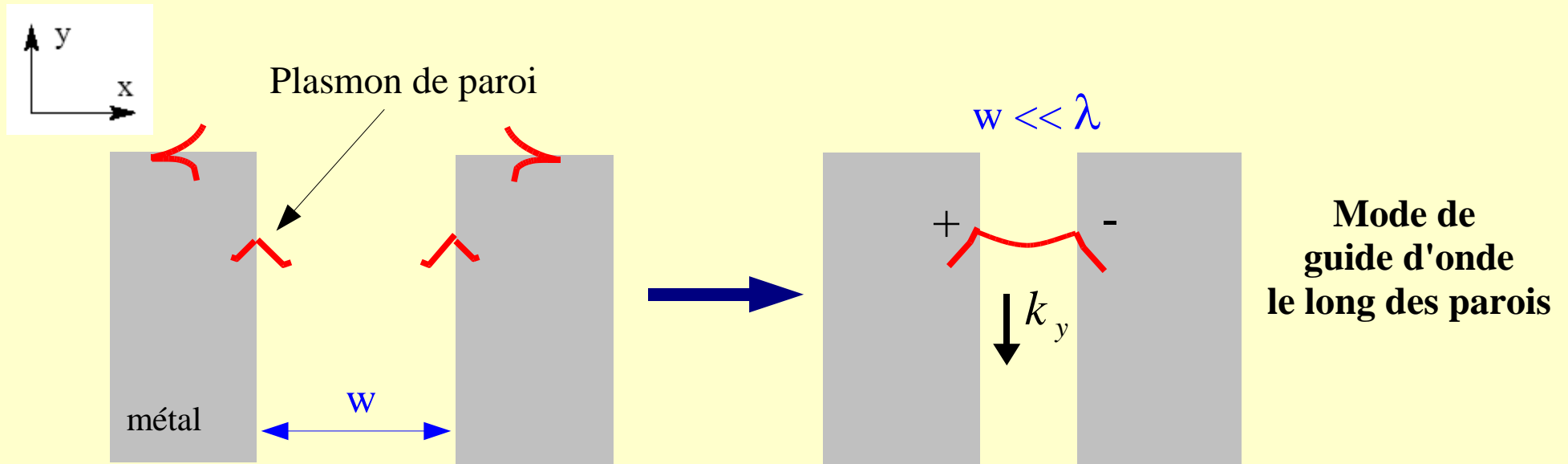
Seul le mode fondamental est *propagatif* dans la cavité:
guide d'onde le long des parois

Approximation unimodale: le champ interne à la cavité est gouverné par le fondamental



$$H_z^{II} = A \times (e^{iky} + r e^{-iky})$$

Méthode restreinte ou exacte ?



MMR

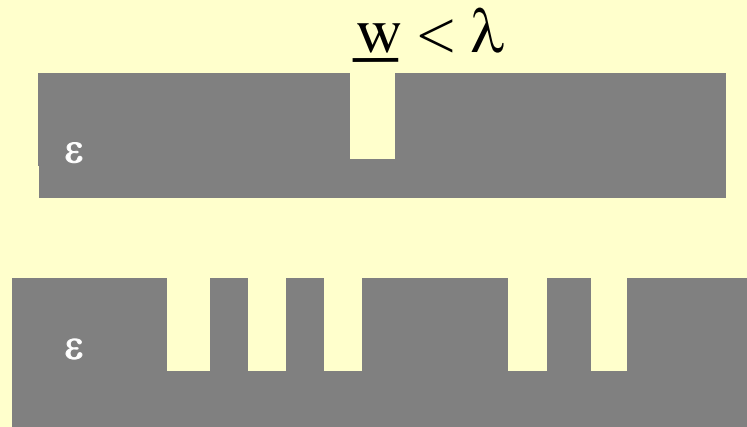
méthode modale restreinte
(parois parfaitement réfléchtrices)

$$\Rightarrow k_y = k_{lumiere}$$

Restriction valable pour des cavités
pas trop sub-longueur d'onde

Domaine infra-rouge ou micro-ondes

Méthode Modale **Restreinte** (MMR)



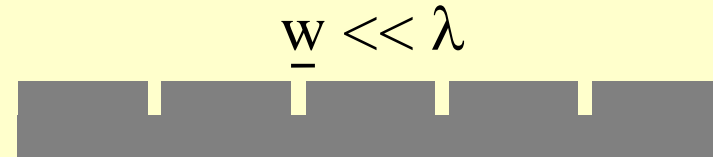
Valable pour un « bon » métal ($\epsilon \ll 0$)
et des dimension pas trop sub-longueur d'onde

Métaux nobles (or, argent) dans l'Infra-Rouge
dimensions $\sim \mu\text{m}$

Effets de localisation de la lumière dans des
structures complexes

(N-uplet de cavités, ou réseau « quasi-périodique »)

Méthode Modale **Exacte** (MME)



Fréquence et matériau quelconques
(mais calculs numériques longs et délicats)

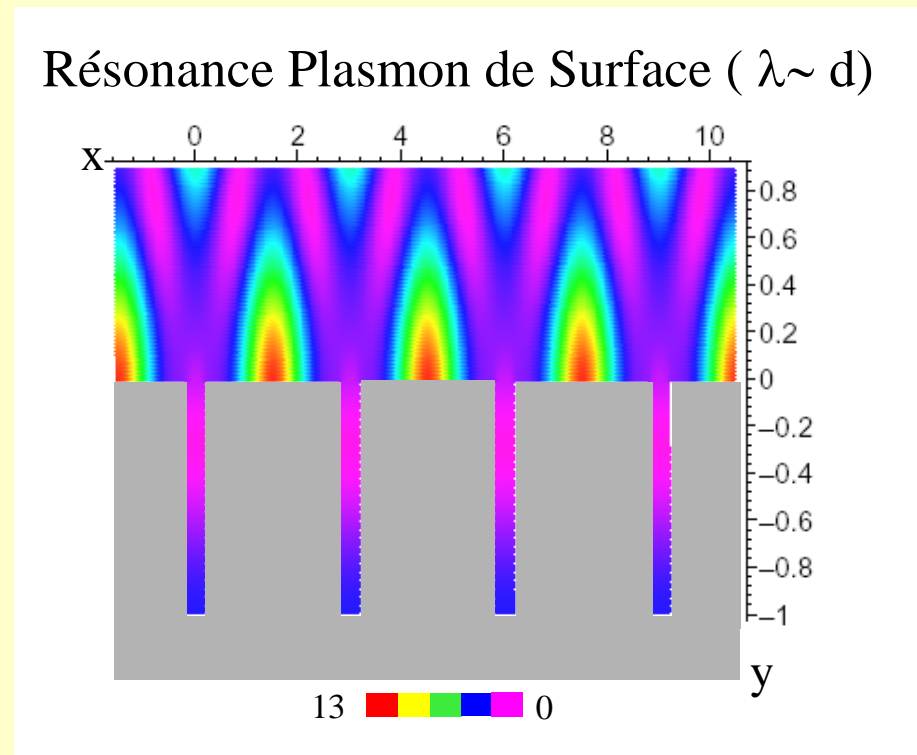
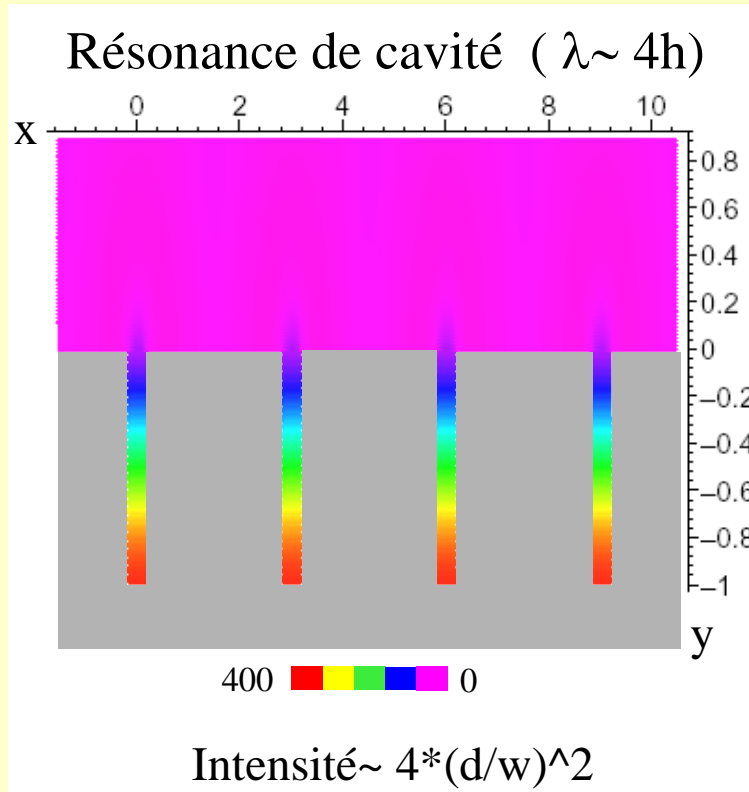
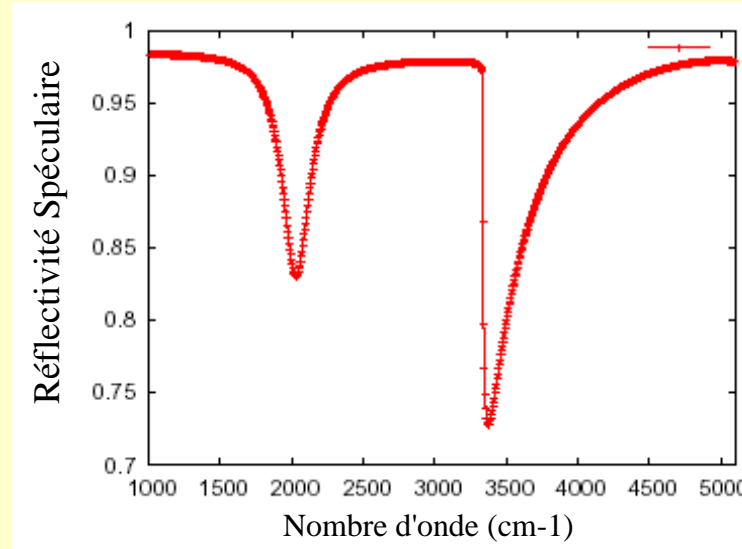
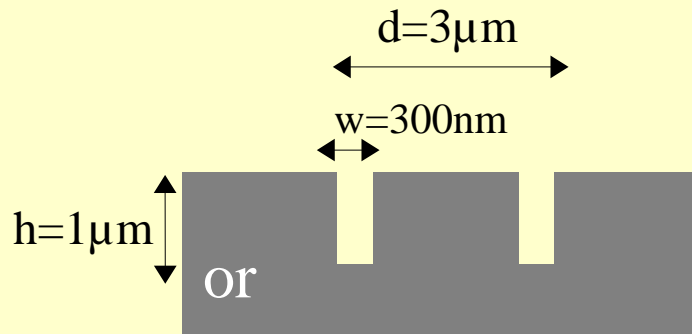
dimensions $< 100 \text{ nm}$

Exaltations géantes dans des cavités
fortement sub-longueur d'onde
(réseaux périodique de très petites cavités)

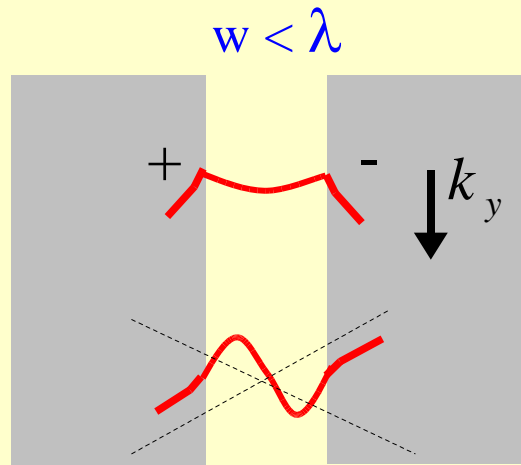
Phénomènes de localisations de la lumière dans des structures complexes

(méthode modale restreinte)

Deux types de résonances bien identifiées

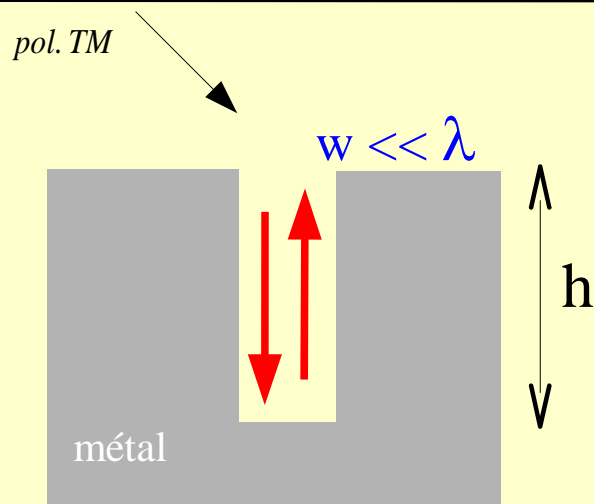


Cavité profonde sub-longueur d'onde: guide d'onde et résonateur de Fabry-Perot



Seul le fondamental
est **propagatif** :
mode de **guide d'onde**

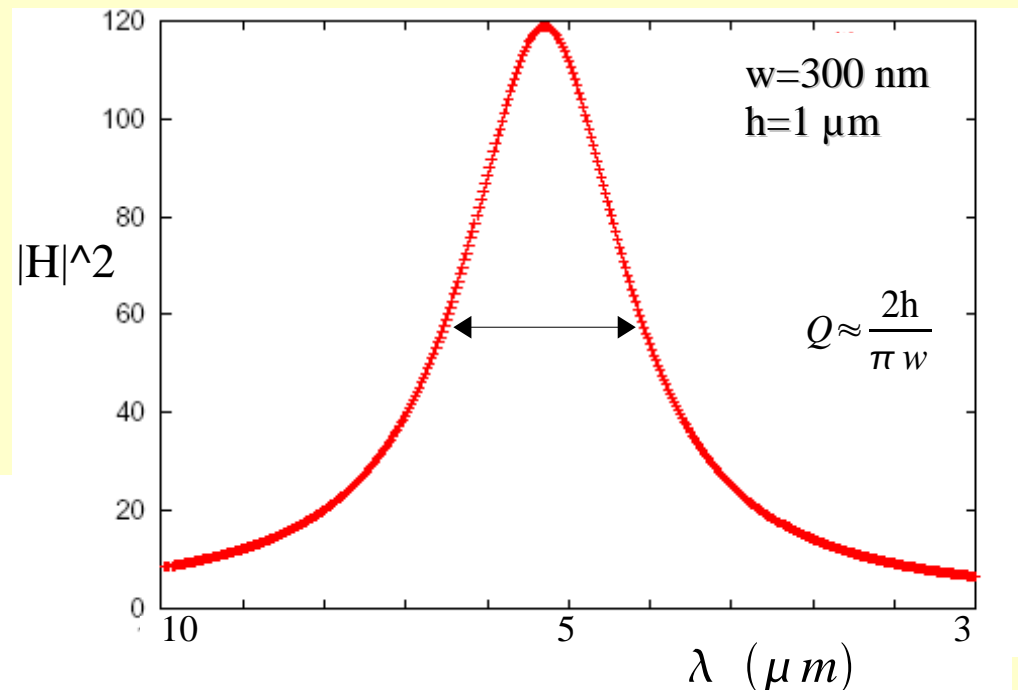
Tous les autres modes
sont **évanescents**



$$\lambda \approx 4h \quad \left(kh \approx \frac{\pi}{2} \right)$$

Résonance de type **Fabry-Perot**

=> Concentration de lumière au sein de la cavité



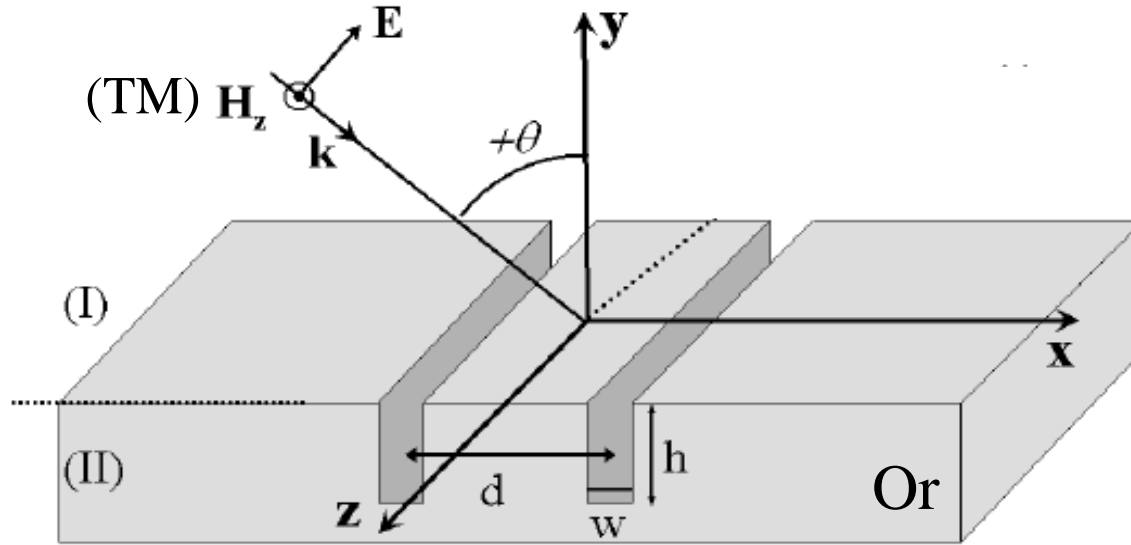
Deux gravures rectangulaires séparées
par une distance *sub-longueur d'onde*

$$w = 0.2 \mu$$

$$h = 1.5 \mu$$

$$d = 0.5 \mu$$

$$\lambda = 5 \text{ à } 10 \mu\text{m}$$



Méthode Modale Restreinte

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

$$H_z^{II}(x, y) = A_1 [e^{iky} + \alpha e^{-iky}] I_1(x) + A_2 [e^{iky} + \alpha e^{-iky}] I_2(x)$$

$$\Rightarrow M \cdot \begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \end{bmatrix} = V$$

Modes propres du système bifente (vecteurs, valeurs propres)

$$U_+ = \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix}, e_+$$

symétrique

et

$$U_- = \begin{bmatrix} 1 \\ -1 \end{bmatrix}, e_-$$

antisymétrique

$$\begin{bmatrix} A_1 \\ A_2 \end{bmatrix} = \alpha U_+ + \beta U_-$$

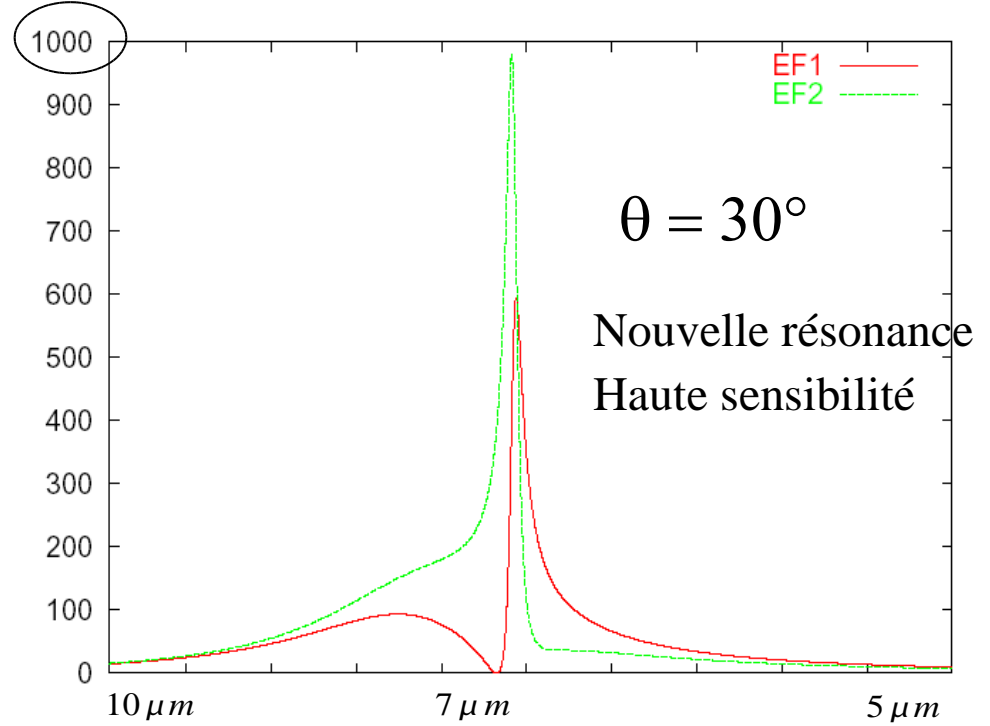
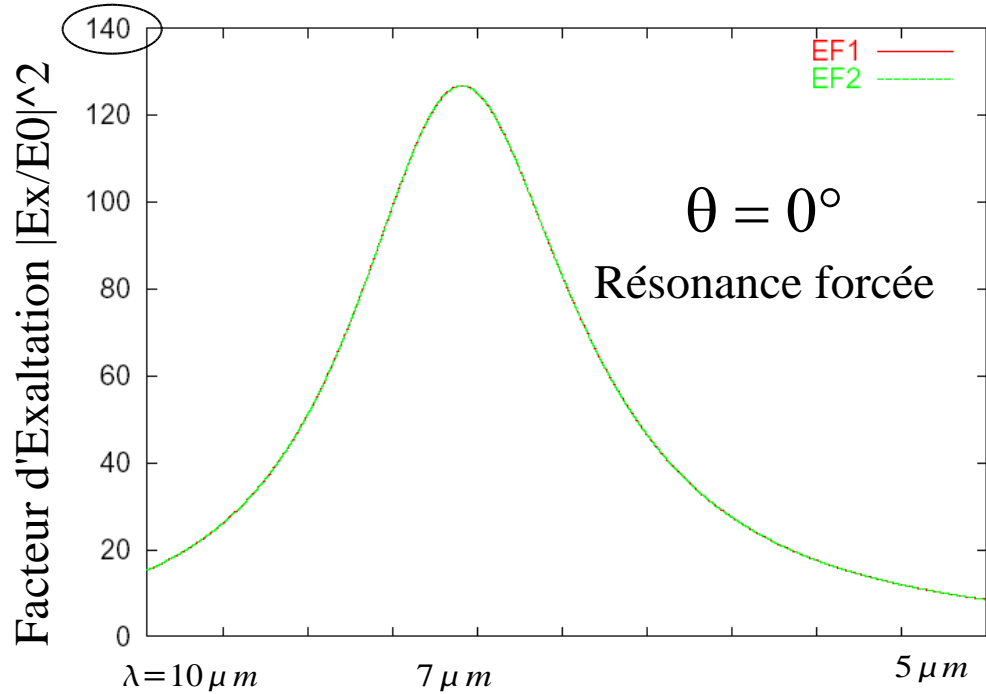
$$A_n = \left[\frac{1}{e_+} + (-1)^n i \tan(\varphi) \frac{1}{e_-} \right] V_0$$

avec

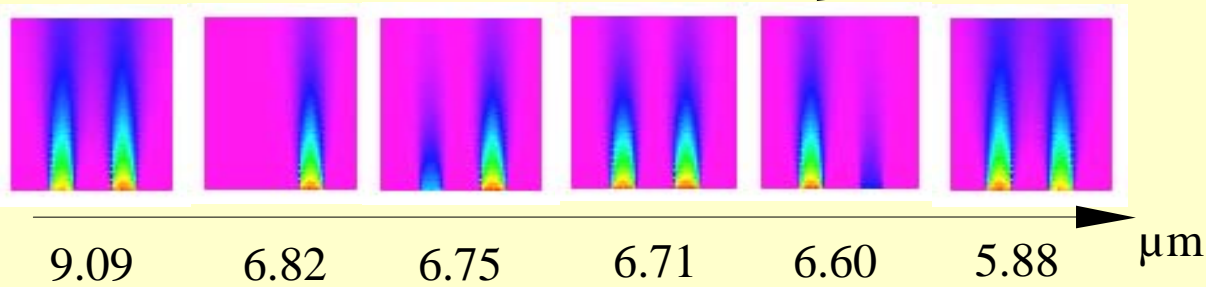
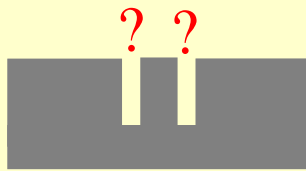
$$e_{\pm} = \cot(kh) - 2i\Gamma \int_0^{\infty} (1 \pm \cos(kdu)) \frac{\sec(kwu/2)}{\sqrt{1-u^2}} du$$

2 resonances attendues, quand

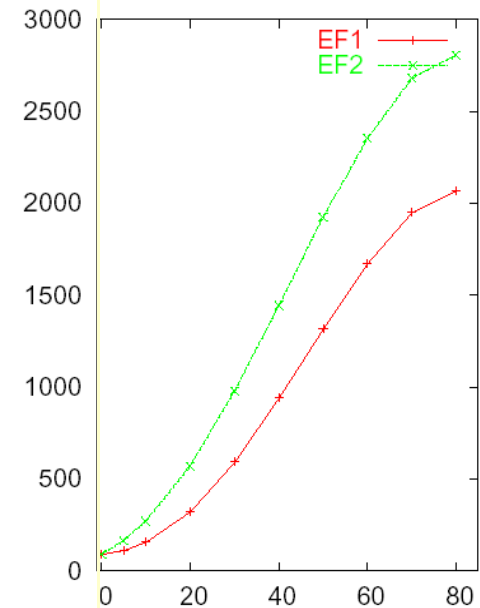
$$\left\{ \begin{array}{l} \Re(e_+) = 0 \text{ pour } \lambda = \lambda_+ \text{ bornée par } \Im(e_+) \\ \Re(e_-) = 0 \text{ pour } \lambda = \lambda_- \text{ bornée par } \Im(e_-) \end{array} \right.$$



HH*



Maxima autour de $6.7\ \mu\text{m}$



Angle d'incidence θ ($^\circ$)

Cas d'une cavité sub-longueur d'onde isolée ...

$$A_0 \propto \frac{1}{e}$$

$$e \approx \underbrace{\cotg(kh) - \frac{k w}{\pi} \left(\frac{3}{2} - \ln(kw) \right)}_{\text{Mode de type Fabry-Perot}} - i \left(\frac{k w}{2} \right)_{\text{amortissement}}$$

Pour un métal parfait

$$\Gamma = \frac{w}{\lambda}$$

$$kh \approx \frac{\pi}{2} + O(kw)$$

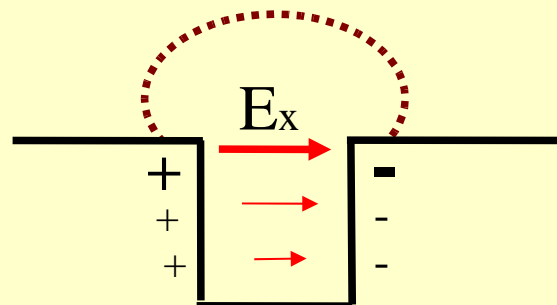
$$\Gamma = \frac{w}{\lambda}$$

=> Comportement d'oscillateur amorti:

$$A_0 \approx \frac{c_0}{\omega_0 - \omega - i\gamma_0/2}$$

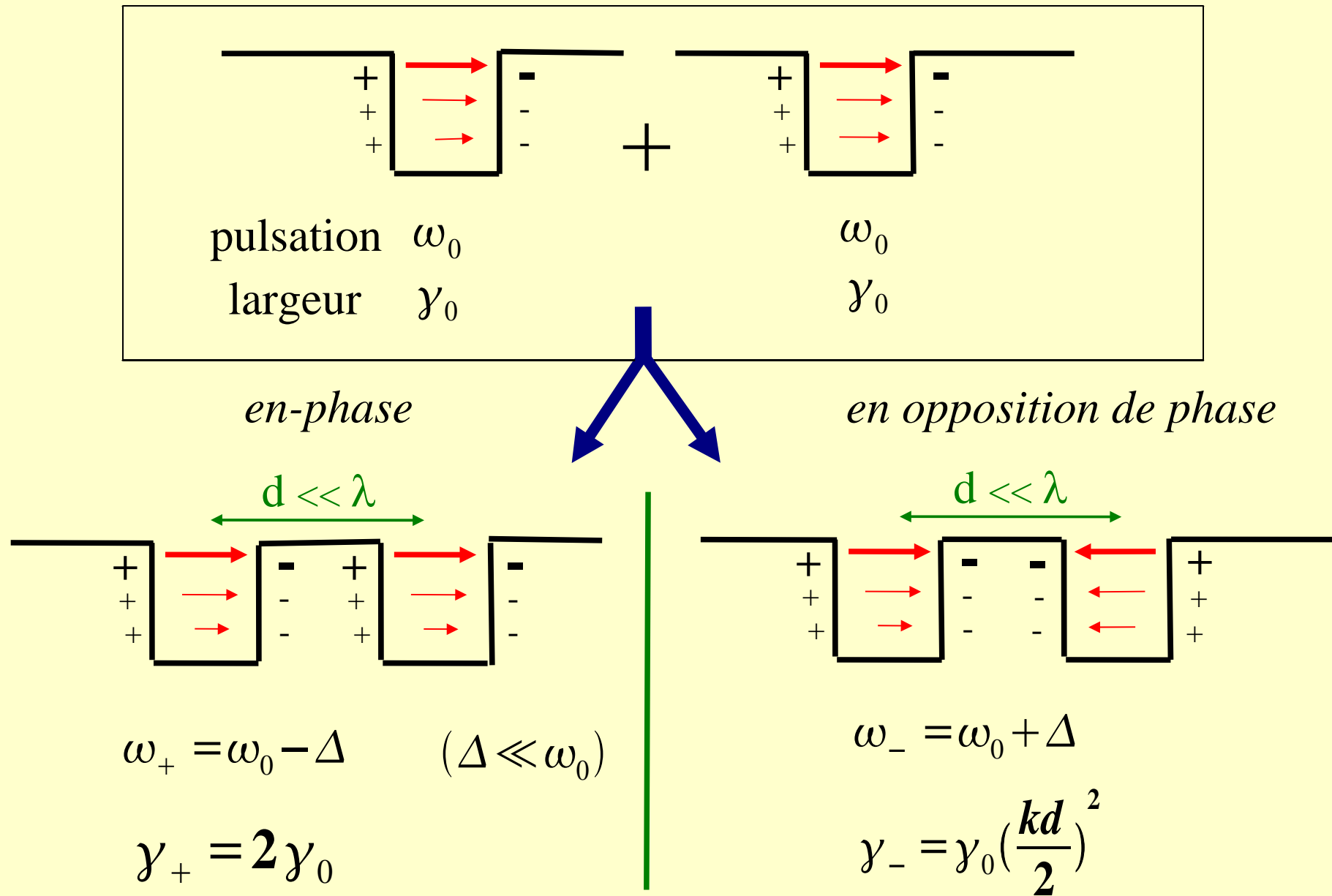
=> Similaire à un dipôle oscillant de rayon électromagnétique r_0 :

$$r_0 = 2w/\pi \quad (\gamma_0 = r_0 \omega_0^2 / c)$$



Moment Effectif de l'ouverture maximum à l'embouchure

Couplage en champ proche \Rightarrow levée de dégénérescence du mode Fabry-Perot



Analogie à 2 dipôles oscillants couplés en champ proche (Lyuboshitz 1967)

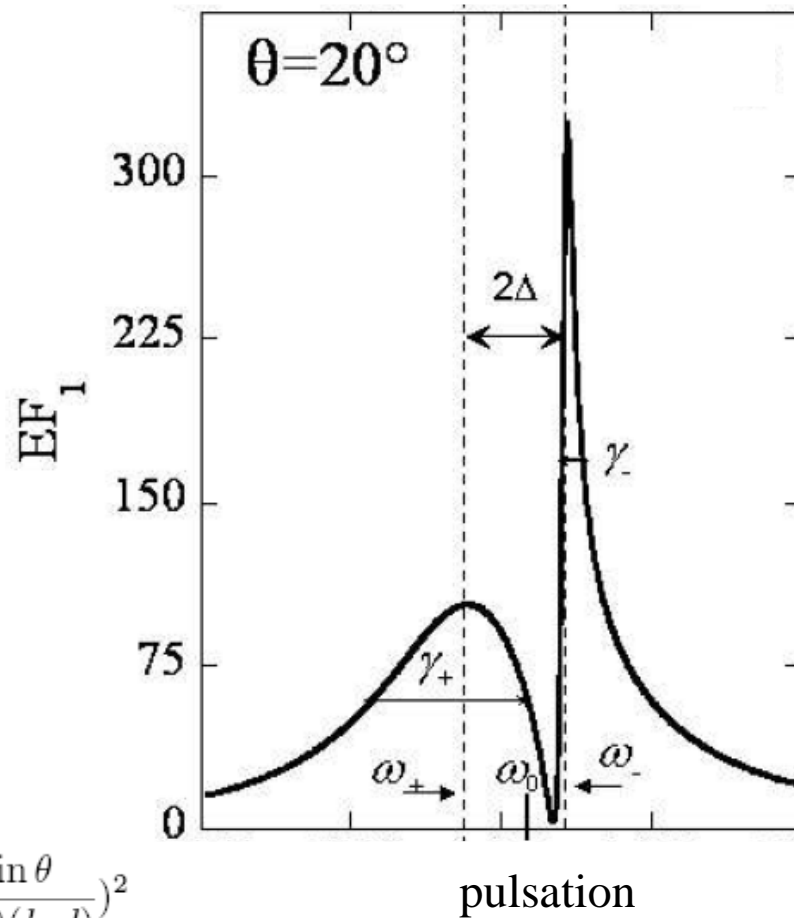
Paire de gravures sub-longueur d'onde / comportement dipolaire

$$\omega_{\pm} = \omega_0 \mp \Delta$$

$$\gamma_+ = 2\gamma_0$$

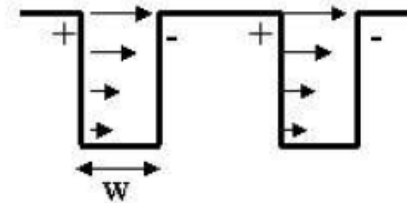
$$\gamma_- = \gamma_0 (k_0 d / 2)^2$$

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

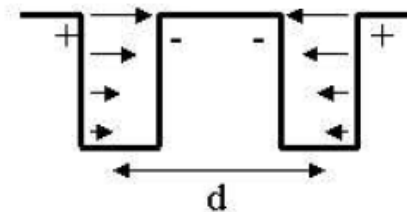


Caractère dipolaire fort
importantes pertes radiatives

(+) mode: $r_- = 2r_0$



(-) mode: $r_- = r_0 (kd/2)^2$

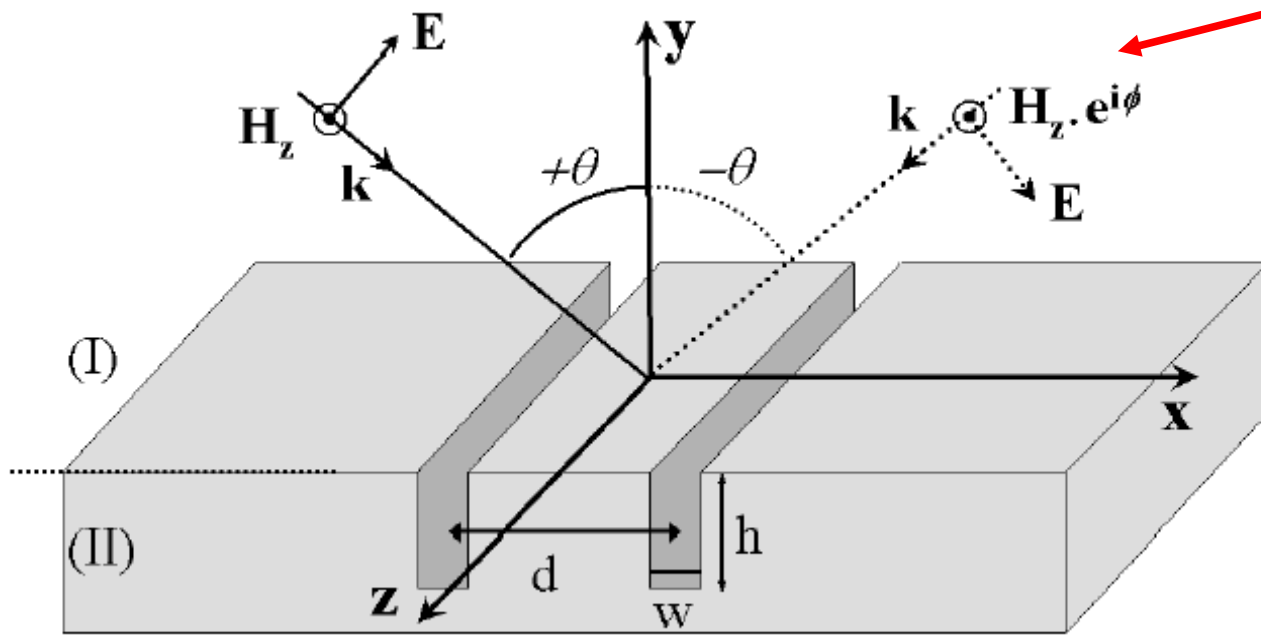


Caractère quadrupolaire
faiblement radiatif

$$\omega_0 (6.97 \mu m) \begin{cases} \rightarrow \omega_+ (7.27 \mu m) \\ \rightarrow \omega_- (6.73 \mu m) \end{cases}$$

$$\text{décalage } \Delta \approx \pm 50 \text{ cm}^{-1} \quad (0.3 \mu m)$$

Incidence sous 2 ondes déphasées

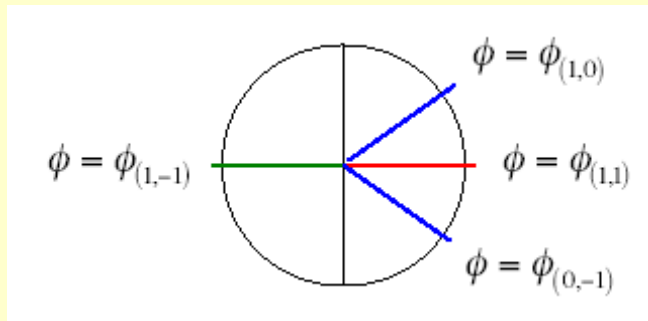


2ème onde incidente
angle d'incidence opposé

déphasage arbitraire $e^{i\phi}$

$$A_n \propto \left[\frac{\cos(\phi/2)}{e_+} + (-1)^n \tan(\varphi) \frac{\sin(\phi/2)}{e_-} \right] \quad \text{avec} \quad \varphi = kd \sin \theta / 2$$

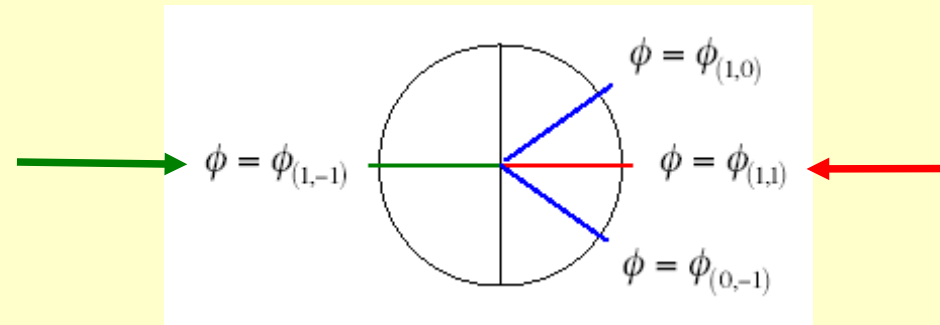
\Rightarrow On peut favoriser
l'excitation de l'un ou
l'autre mode propre



En faisant varier ϕ de 0 à 2π , de *nouvelles* réponses électromagnétiques apparaissent

Obtention d'un mode pur : (1,1) or (1,-1) exclusivement

$$A_n \propto \left[\frac{\cos(\phi/2)}{e_+} + (-1)^n \tan(\varphi) \frac{\sin(\phi/2)}{e_-} \right]$$

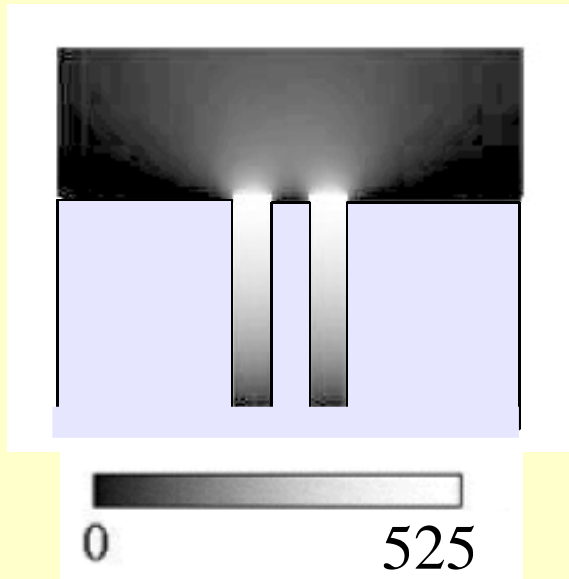


$$\phi = 0 \rightarrow A_1 = A_2 \propto \frac{1}{e_+}$$

$$\lambda_{(1,1)} = 7.27 \mu m$$

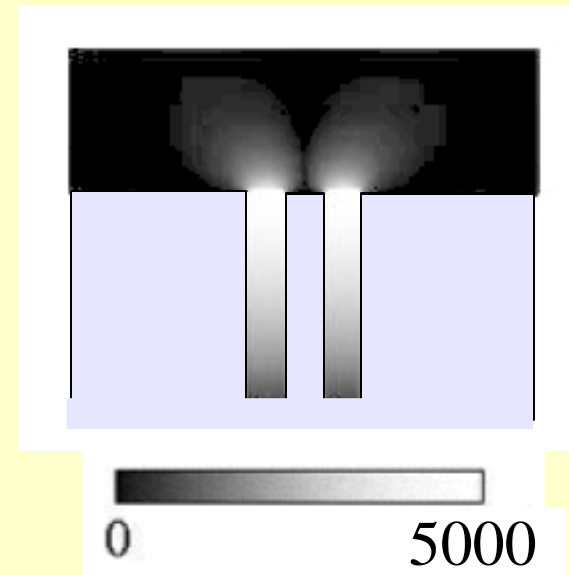
$$\phi = \pi \rightarrow A_1 = -A_2 \propto \frac{1}{e_-}$$

$$\lambda_{(1,-1)} = 6.73 \mu m$$



Cartographie
de $|E_x/E_0|^2$

$$\theta = 45^\circ$$



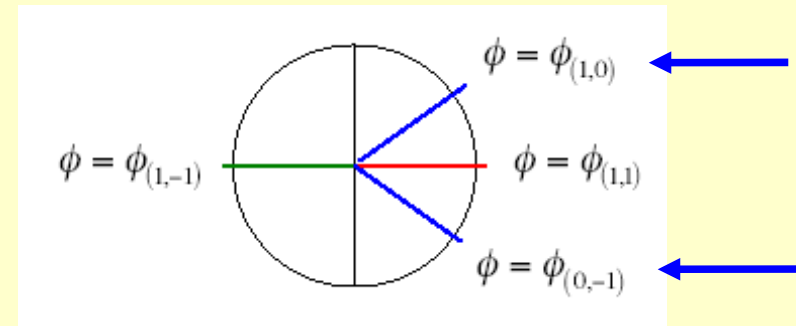
Extinction complète d'une des cavités, au choix

$$A_n \propto \left[\frac{\cos(\phi/2)}{e_+} + (-1)^n \tan(\varphi) \frac{\sin(\phi/2)}{e_-} \right] = 0 ? \text{ Oui ! Si :}$$

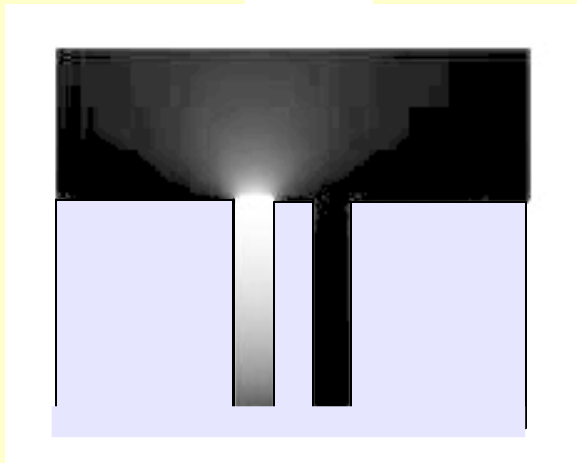
$$\cot(\phi/2) = \pm(e_+/e_-)\tan(\varphi)$$

$$(e_+/e_- \approx \text{real} \rightarrow \omega \approx \omega_- + 2\Delta(\gamma_-/\gamma_+))$$

$$\text{\AA } \theta=45^\circ \left\{ \begin{array}{l} \lambda_{\text{extinction}} = 6.71 \mu\text{m} \\ \Phi_{(1,0)} = -33^\circ = -\Phi_{(0,-1)} \end{array} \right.$$



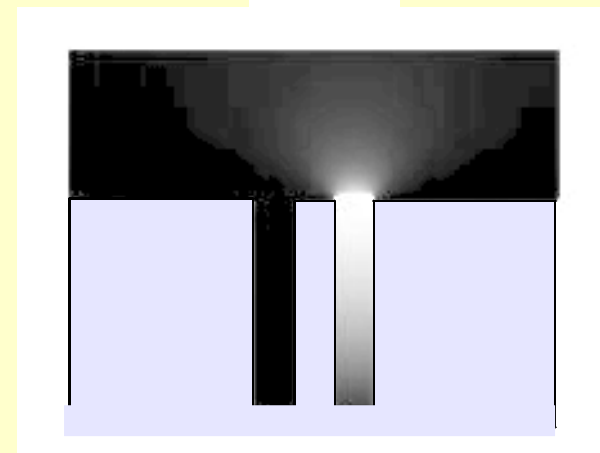
$\phi_{(1,0)}$



Cartographies
de $|E_x/E_0|^2$

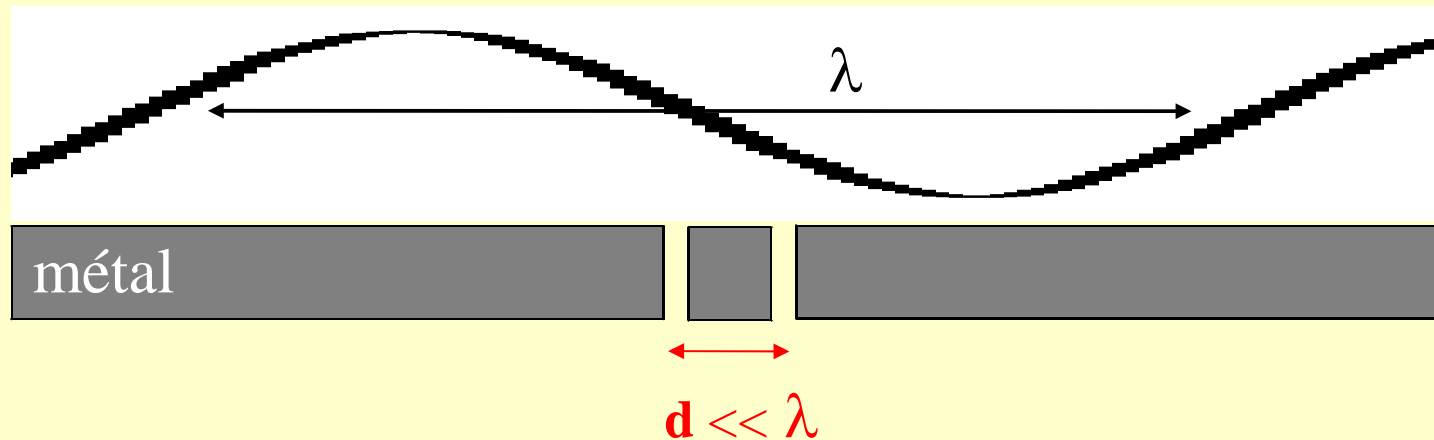


$\phi_{(0,-1)}$



On a compris et identifié les modes propres du couple de fentes sub- λ

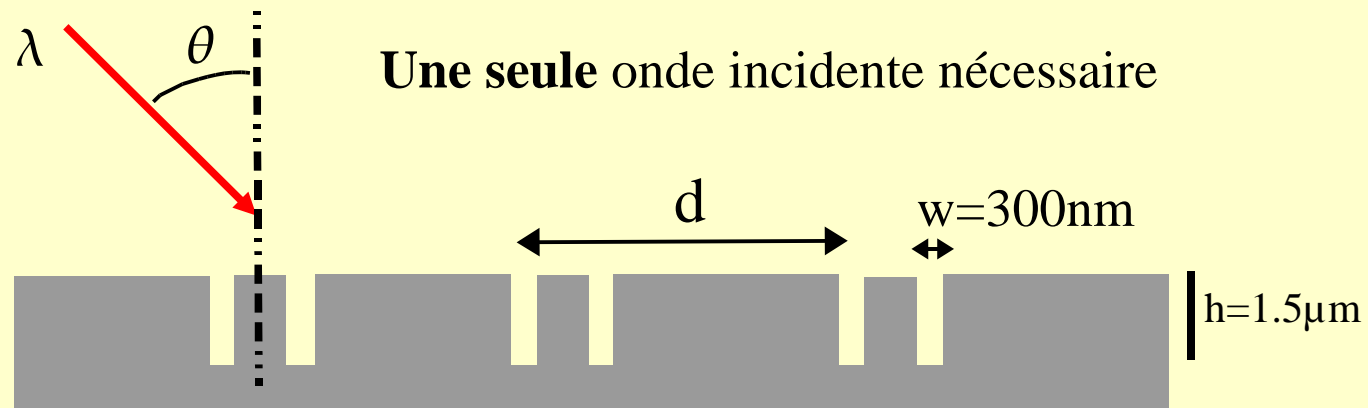
Le paramètre ϕ permet un **contrôle de la localisation de la lumière**, depuis le champ lointain, sur une échelle **10 à 20** fois plus petite que la longueur d'onde!



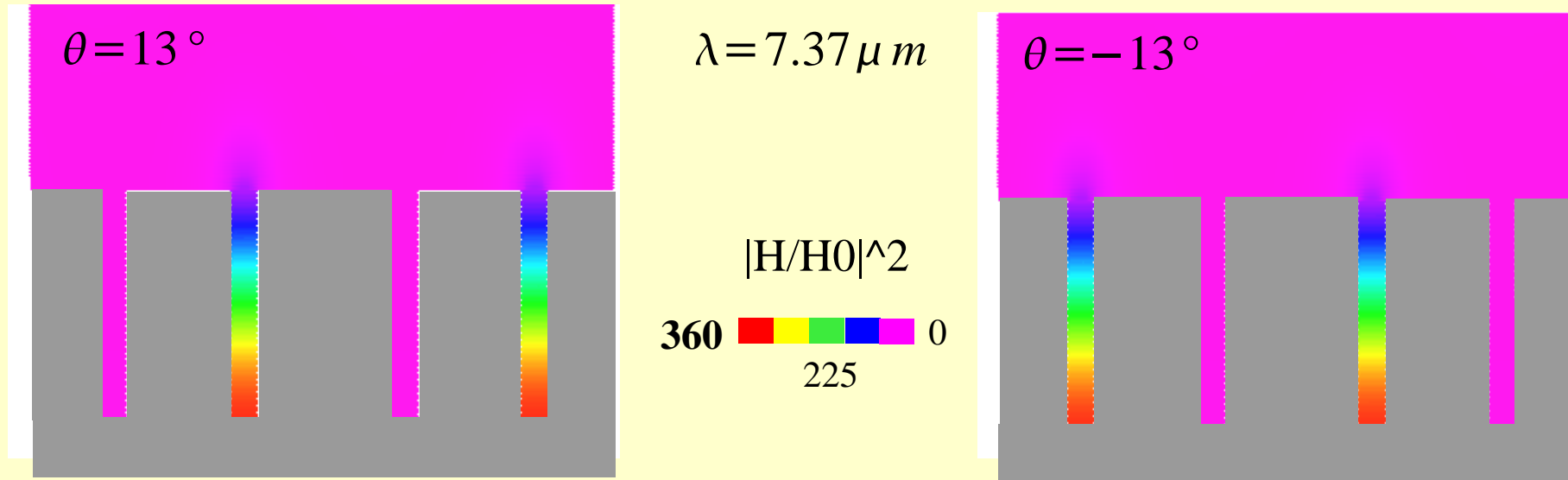
États binaires (1,1), (1,0), (1,-1), (0,-1) contrôlés

=> variateur/commutateur optique sub-longueur d'onde

Extension au réseau à 2 cavités par période



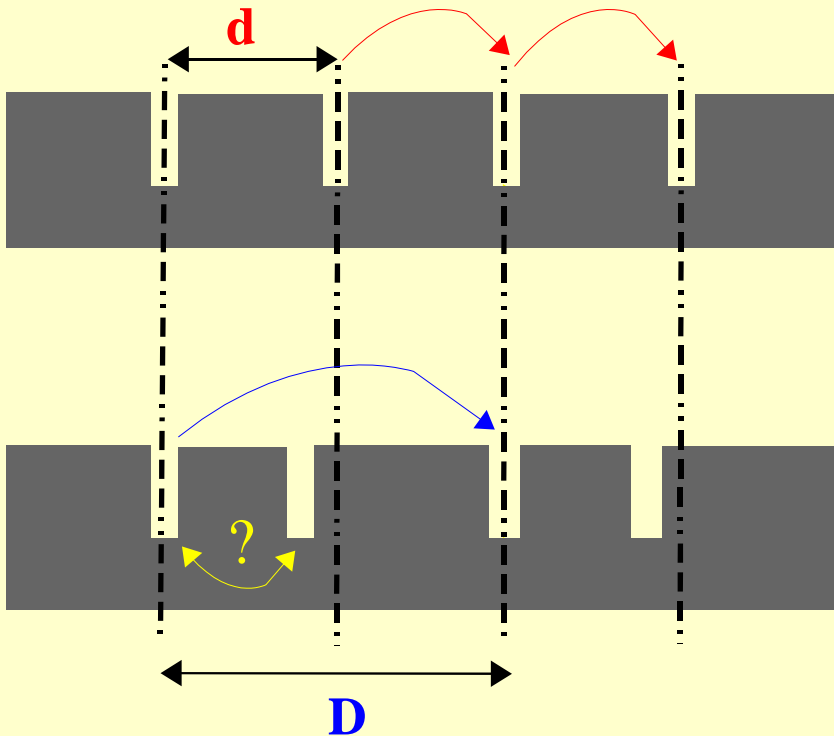
Effet de commutation possible avec un bon choix de paramètres géométriques



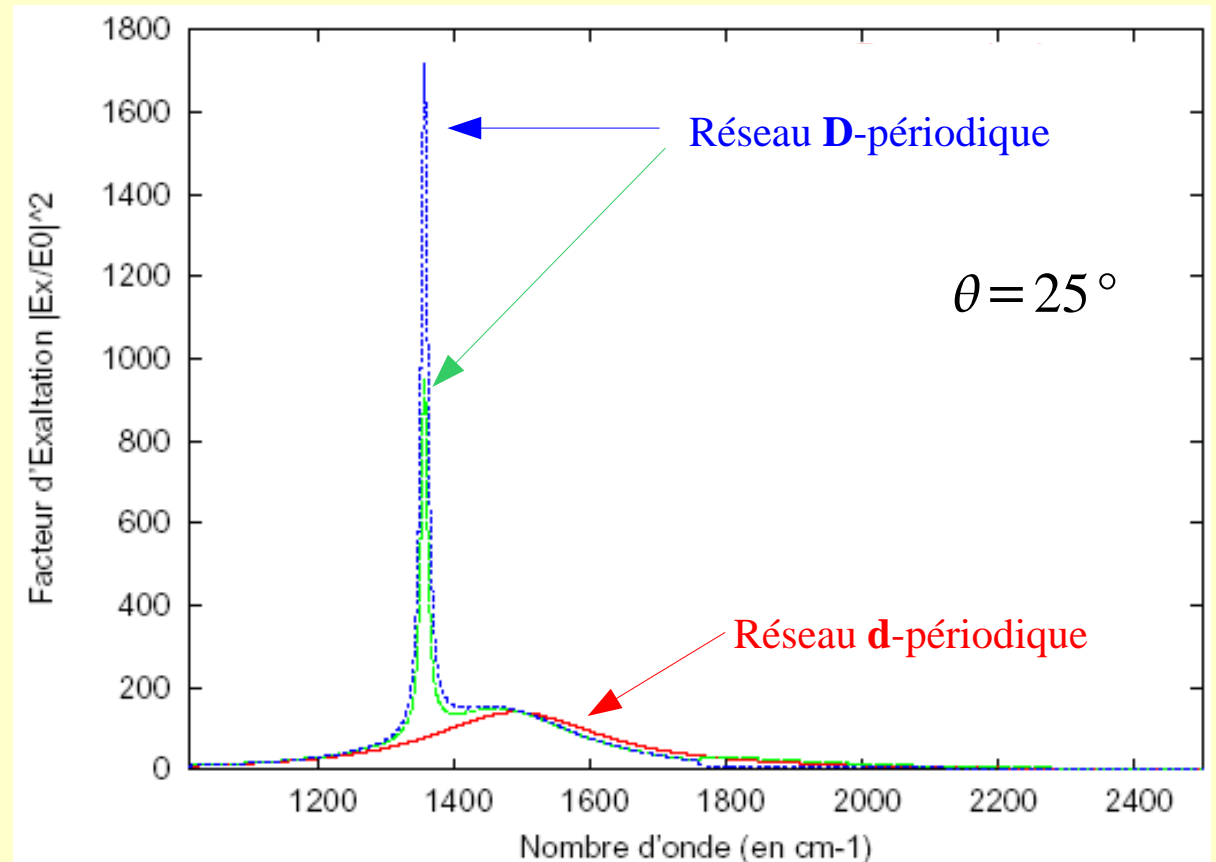
\Rightarrow *Adressage quantitatif de la lumière* à l'échelle de tout un réseau

Localisation intense liée au « désordre » de surface

Toutes les cavités équivalentes

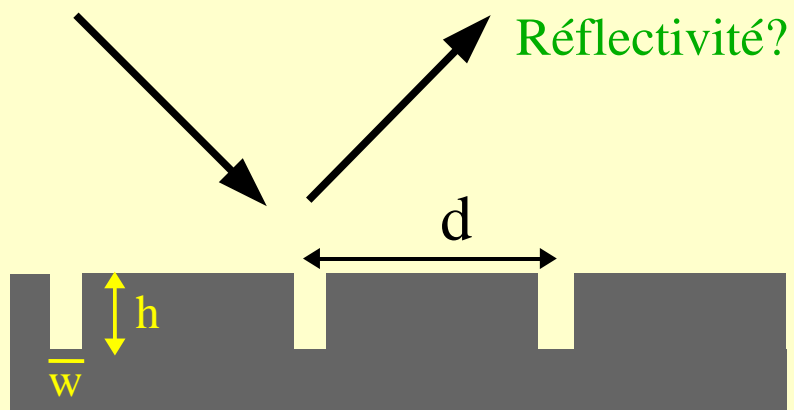


Toutes les cavités ne sont plus équivalentes
=> nouveau degré de liberté dans le couplage
des résonateurs au sein de la période

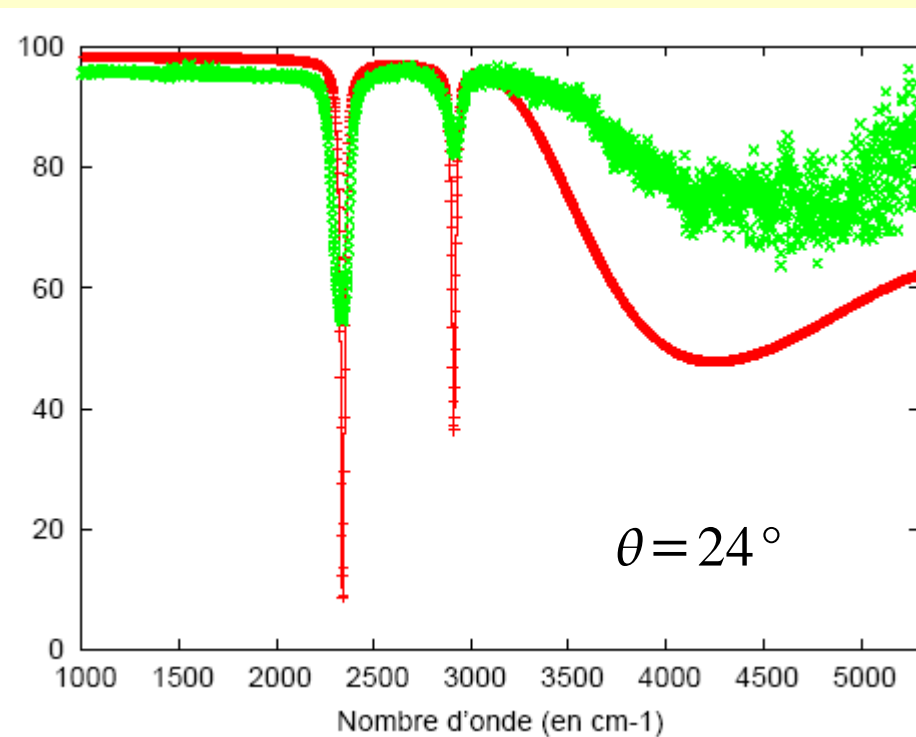
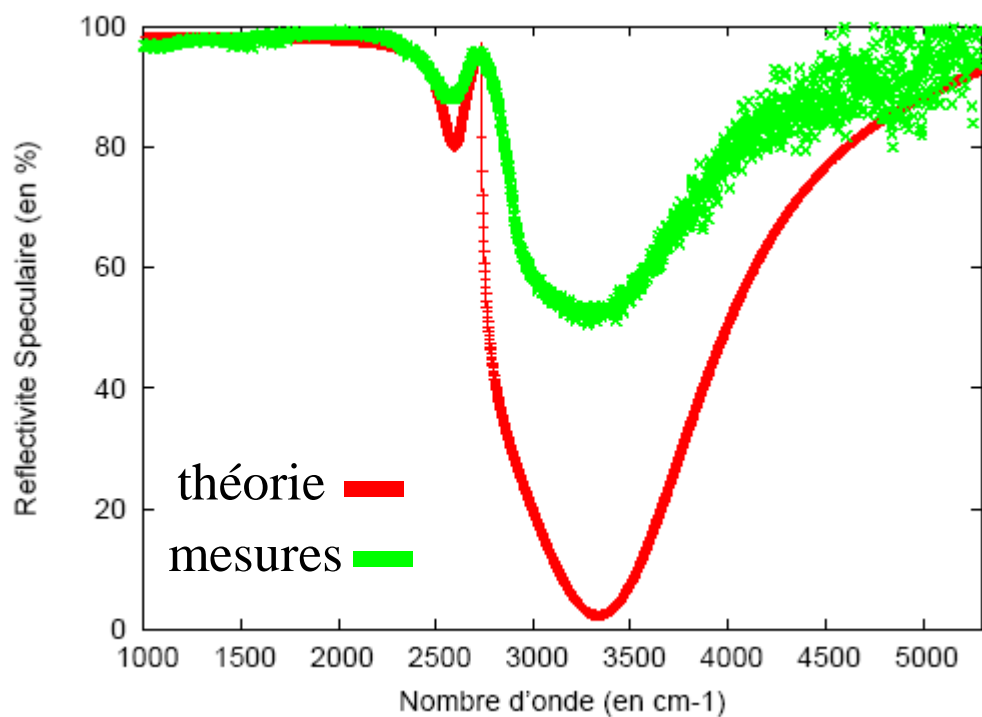
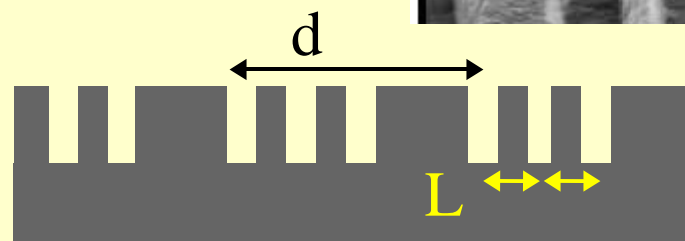
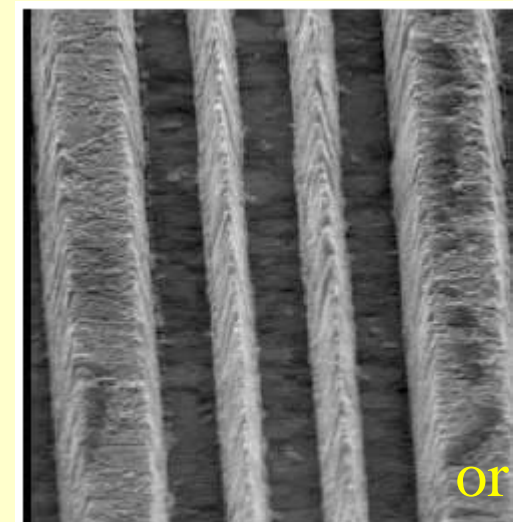


Le **désordre** (ou la rupture de symétrie) de la structure autorise de **nouvelles localisations** (et exaltations) de la lumière

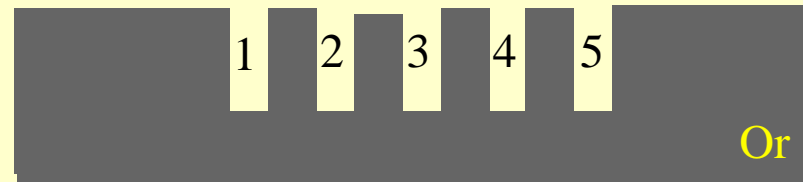
Preuve expérimentale des nouveaux modes de localisations (collaboration : LPN)



$d = 2.6 \mu\text{m}$
 $h = 0.65 \mu\text{m}$
 $L = 650 \text{ nm}$
 $w \sim 400 \text{ nm}$



Contrôle des exaltations dans un N -uplet de cavités sub- λ



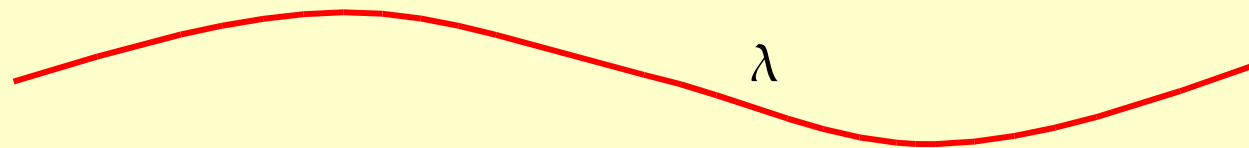
$N=5$

$w=200$ nm

$h=1.5$ μ m

$d=500$ nm

(équadistance)



λ

3 modes symétriques

+

2 antisymétriques

$\theta=0^\circ$

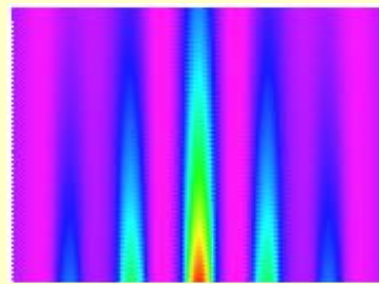
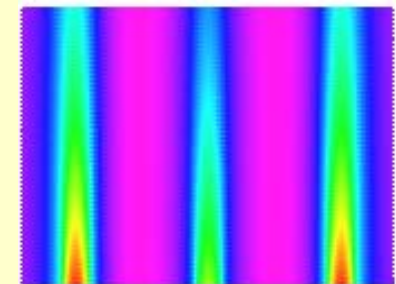
$\theta=70^\circ$

$\lambda = 6.85$ μ m

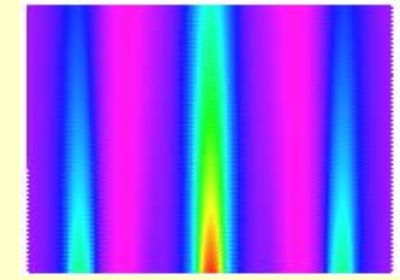
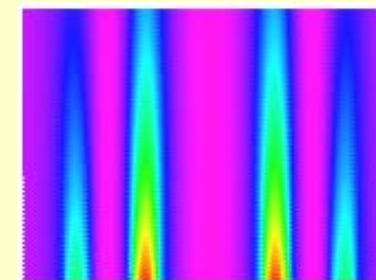
6.64 μ m

6.70 μ m

6.88 μ m



Cartes de
 $|H_z/H_0|^2$



1 2 3 4 5

1 2 3 4 5

1 2 3 4 5

1 2 3 4 5

EF1=EF5= 1036

EF3= 750

EF2=EF4= 0

Localisations: différents *jeux* d'allumage

Exaltations: différents *rappports d'intensité et de phase*

Perspectives:

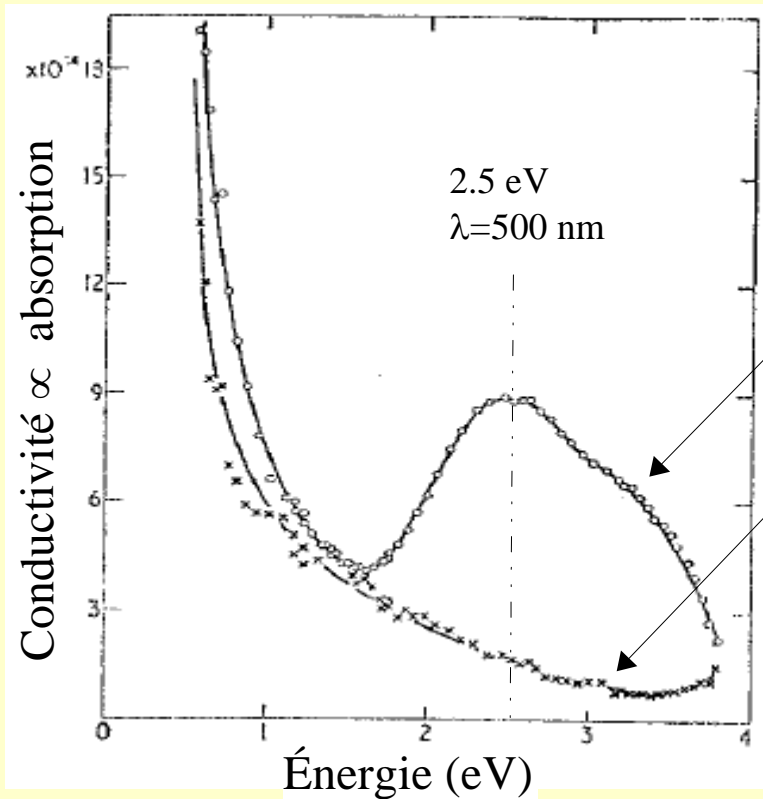
- Structures plus complexes, quasi-périodiques...
- Preuve expérimentale du contrôle de la localisation
(système bi-fente, en réseau ou pas)

=> spectroscopie, points chauds, effet SERS
- Adressage quantitatif de la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde

Absorption Optique Anormale (AOA) et exaltations géantes en surface

(méthode modale exacte)

Absorption optique anormale (AOA) / exaltations de surface



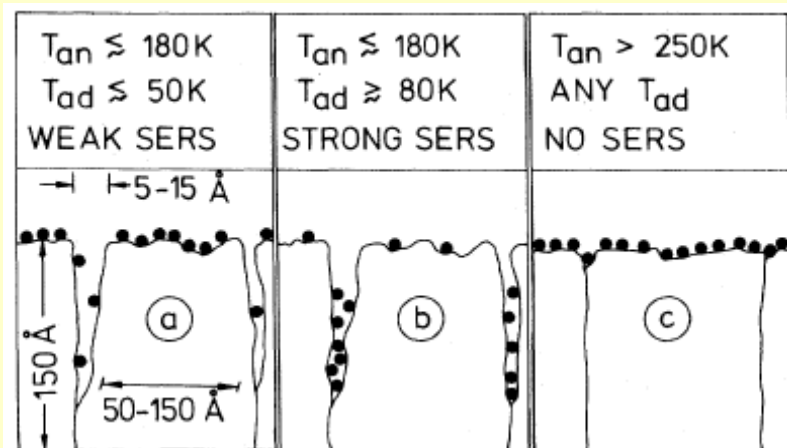
Hunderi & Myers (1973)

Film d'argent déposé à **froid** (140K)

Après **réchauffement**...

Plasmons de surface excités par la rugosité du film froid ?

Non, la résonance du plasmon est bien identifiée et persiste après réchauffement



Albano *et al* (1983)

*Les molécules ayant migré dans les **interstices** du film froid émettent un signal Raman amplifié (effet SERS)*

augmentation de la température => disparition du SERS et de l'AOA

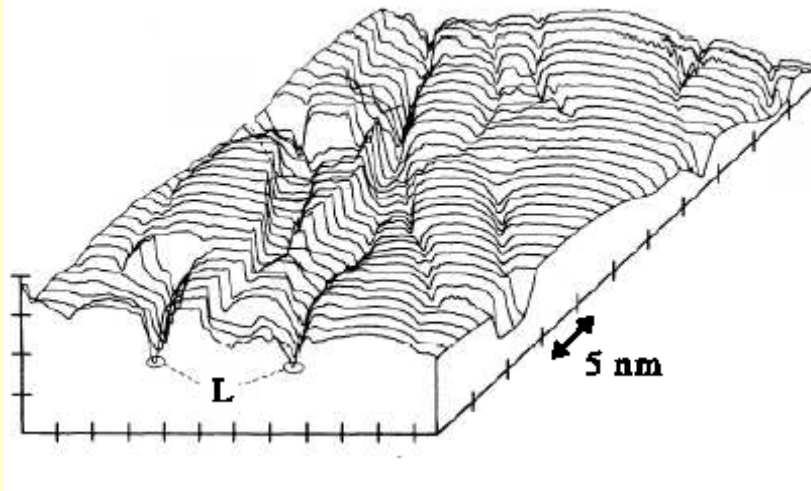
Le réseau lamellaire comme modèle d'approche

Idée : interstices cristallins (joints de grains) sièges de résonances électromagnétiques très intenses.
molécules piégées => effet SERS

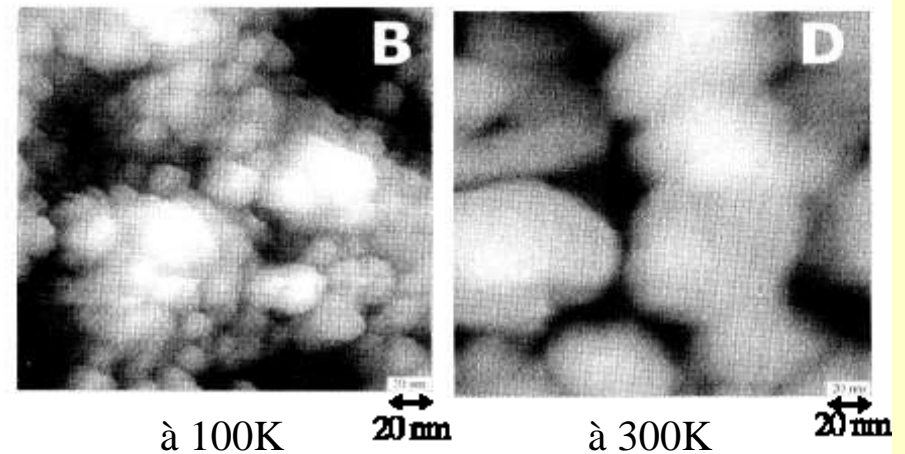
Exaltations locales du champ? Explication physique ?

Film en argent

Gimzewski *et al* (1985)



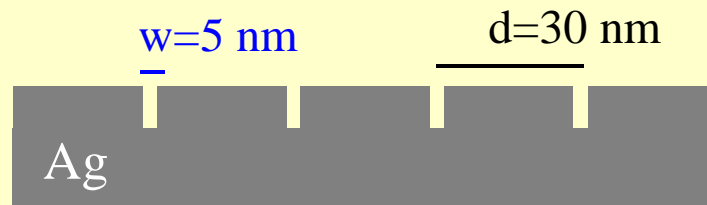
Douketis *et al* (1995)



=> taille typique des défauts de surface : 5 à 30 nm

Résonance intersticielle

Réseau périodique

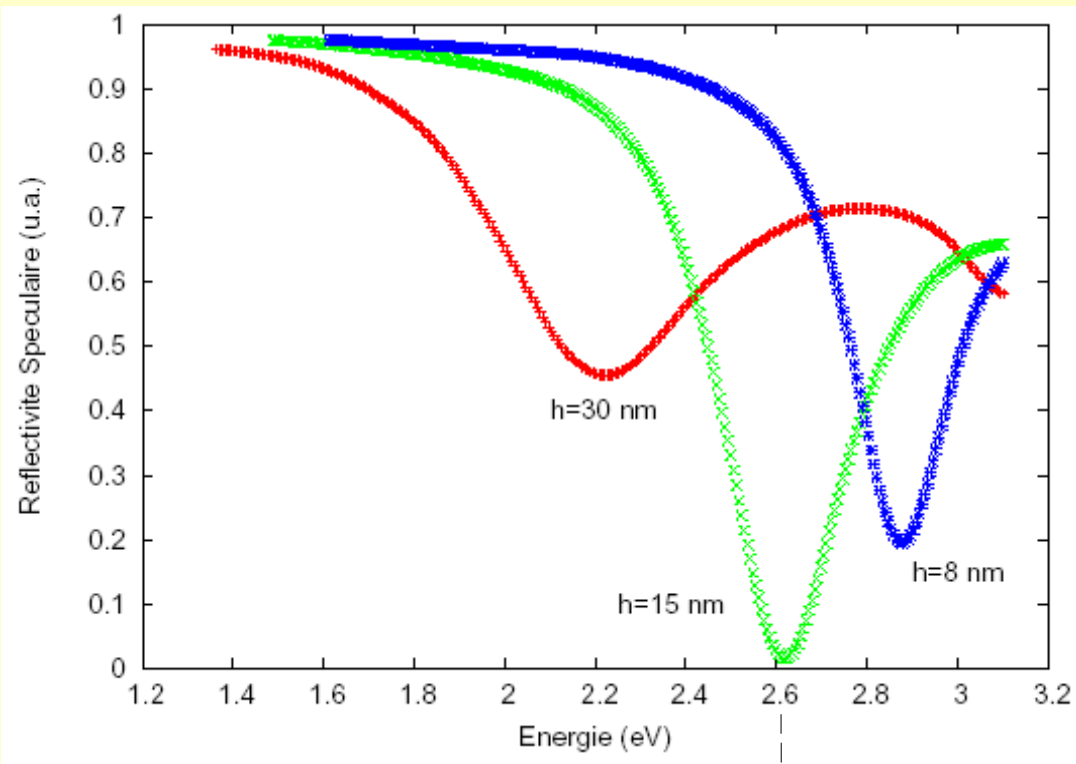
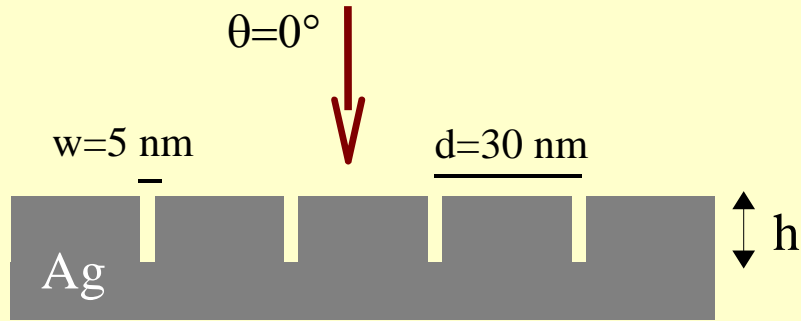


(Méthode Modale Exacte)

Résonance de cavité ?
(Fabry-Perot)

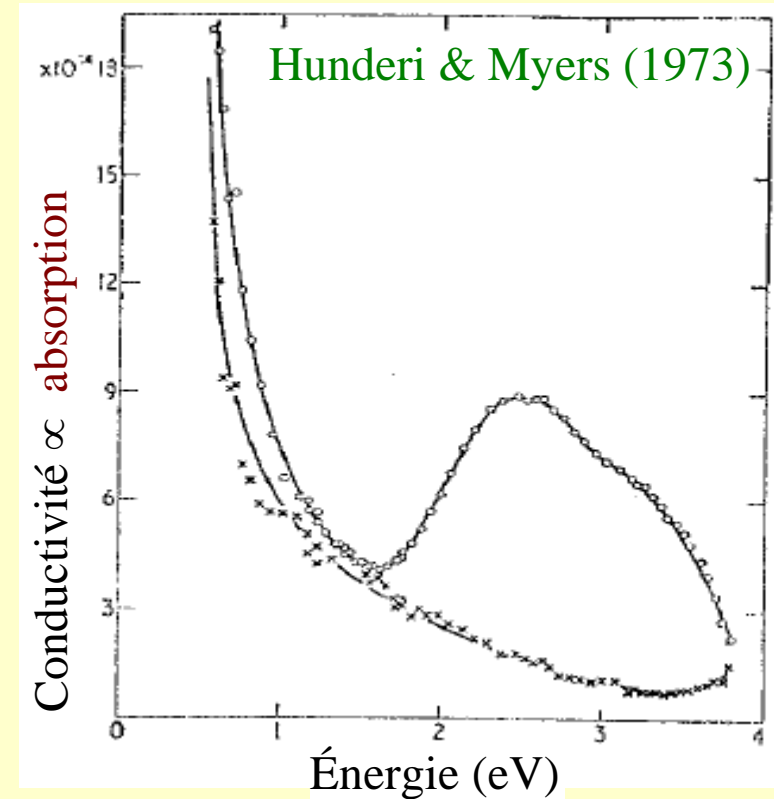


Absorption « anormale » du réseau comparée à celle du film froid



$\lambda=500$ nm

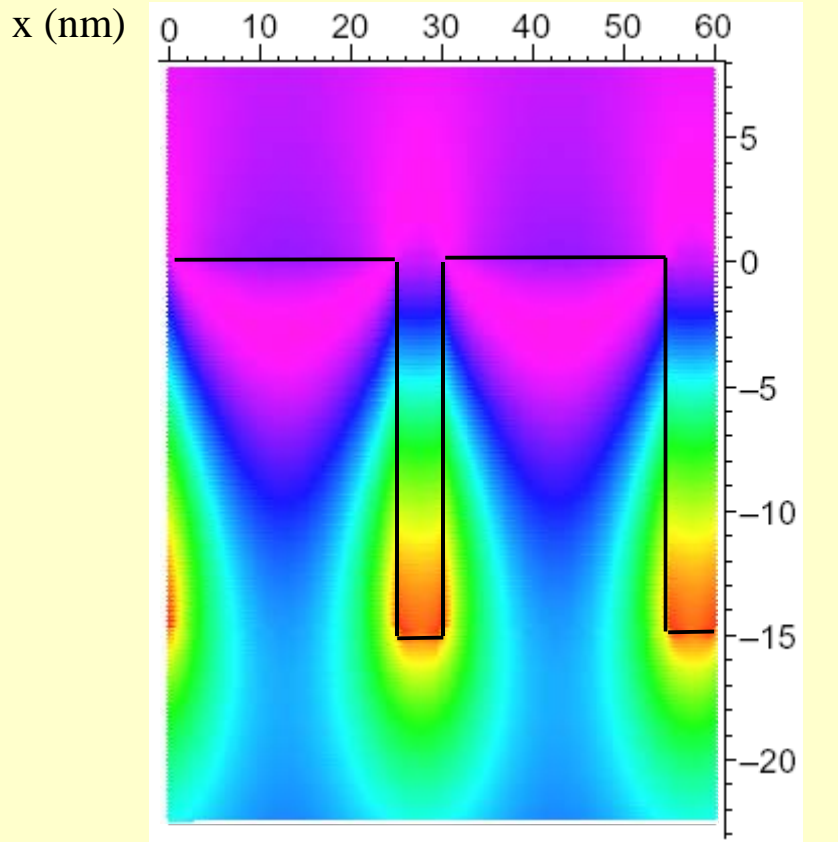
Existence d'une profondeur optimale h pour laquelle toute l'énergie incidente est absorbée par le réseau



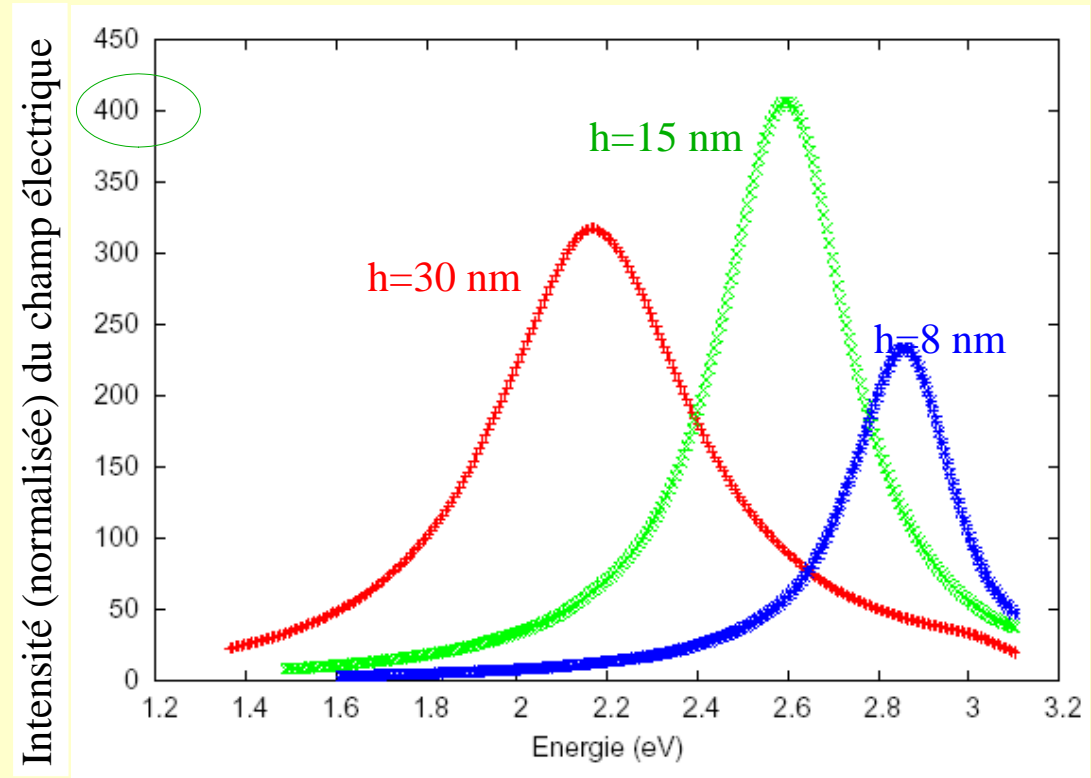
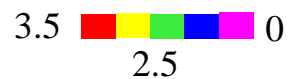
La **résonance** de multiples petits défauts de surface a des répercussions **considérables** sur la réponse **macroscopique** du système...

Absorption « anormale » du réseau comparée à celle du film froid (suite)

$\lambda=480$ nm



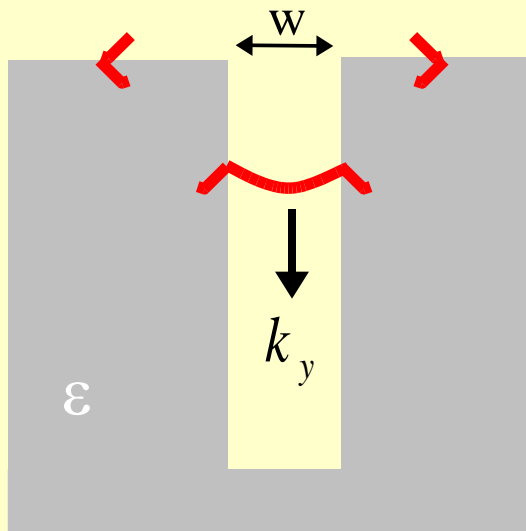
Module du champ magnétique



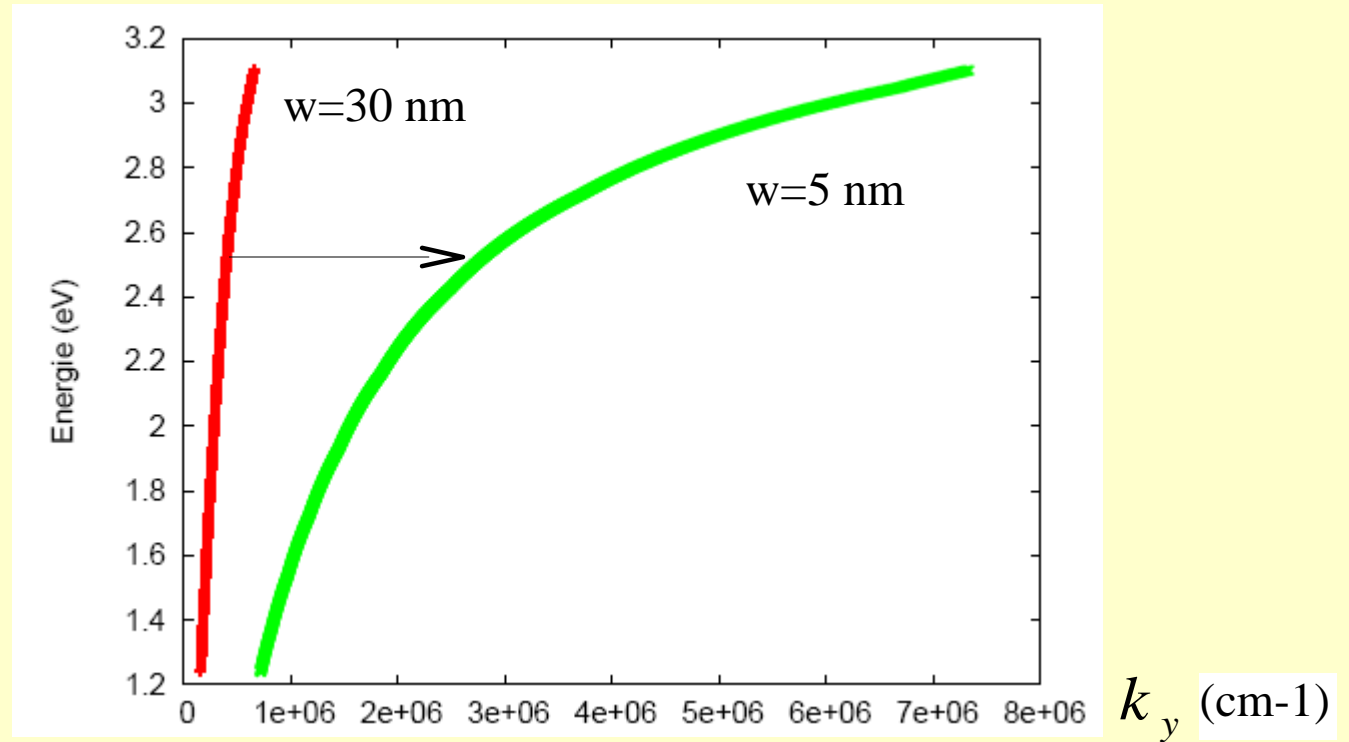
À la résonance :
 $\lambda / w \sim 100$ et $\lambda / h > 30 !$

Comment est-ce possible ?

Couplage fort des plasmons de parois ($w \ll \lambda$)

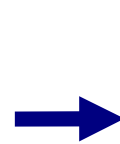


$\lambda \sim 500 \text{ nm}$



- 1) Résonance de type Fabry-Perot
- $$k_y h \approx \frac{\pi}{2}$$

~~$$k_y \approx k$$~~

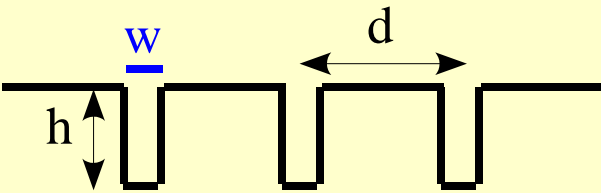


$$k_y \approx k \sqrt{1 + \frac{2}{kw \sqrt{|\epsilon|}}}$$

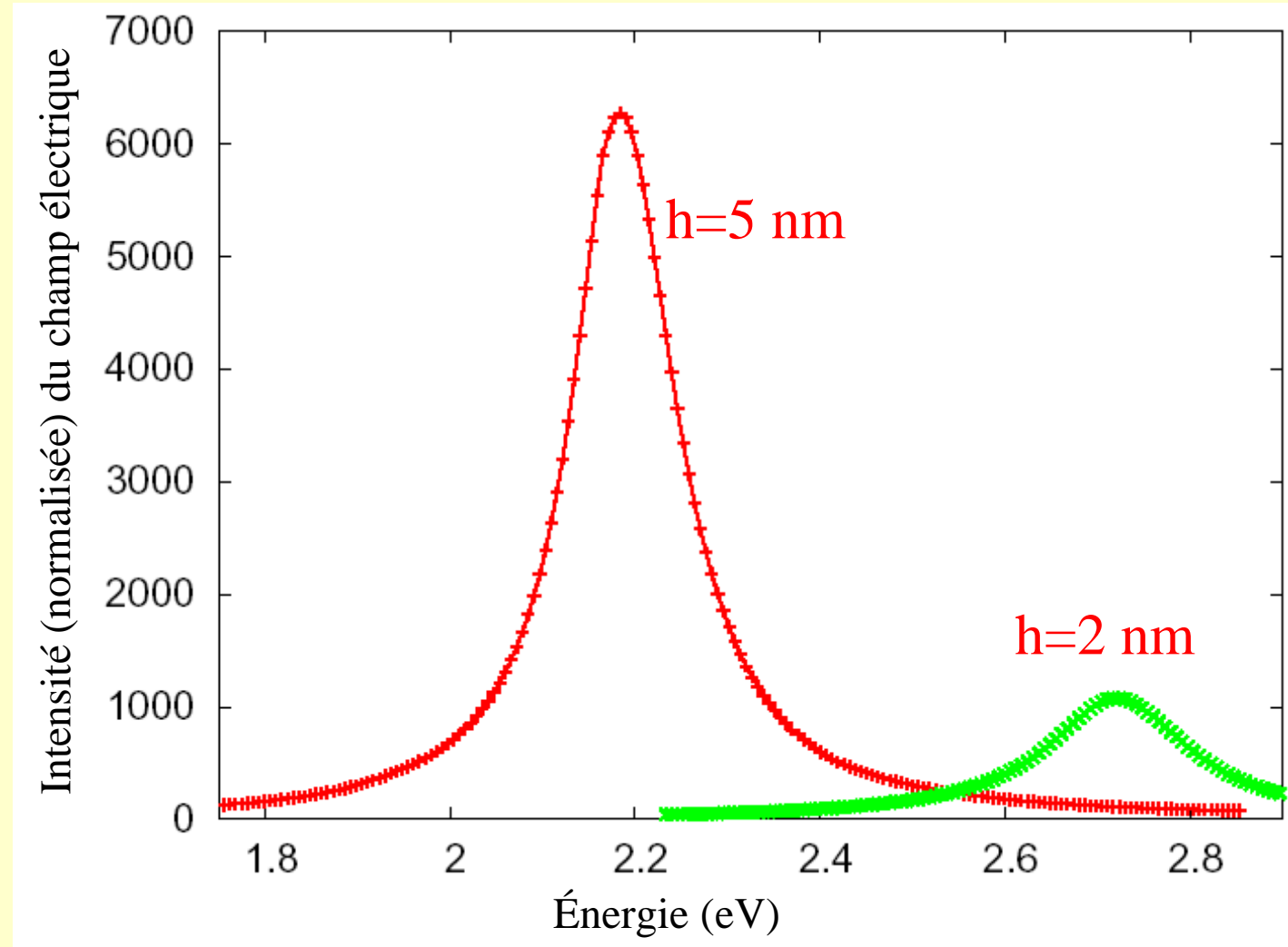
- 2) $\left| \frac{H_z}{H_0} \right| \sim \frac{d}{w(k_y/k)} \downarrow$ mais $\left| \frac{E_x}{E_0} \right| \sim \frac{d}{w} \uparrow$ Caractère davantage « électrique »

Réseau nanométrique: exaltations géantes

Réseau en argent
période $d=30$ nm
 $w=1$ nm (10\AA)



Domaine visible
 $\lambda =$ de 400 à 700 nm



Optimisation:

avec $w=1$ nm, $d=200$ nm, $h=10$ nm

Facteur d'exaltation $\sim 20\ 000$ (dans le rouge)

Exaltation de l'intensité Raman : $G \sim 10^8$ à $10^9 \Rightarrow$ surface « SERS-active »

Conclusion

Contrôle de la localisation de la lumière
à l'échelle sub-longueur d'onde => adressage photonique

Une explication plausible de l'Absorption Optique Anormale

Réseaux métalliques de cavités nanométriques:

- surfaces reproductibles
- ajustables spectralement
- à haut facteur d'exaltation

=> contrôle potentiel des exaltations Raman (SERS)

Quelques perspectives:

- transposition aux cristaux ioniques
- effets non-linéaires

Diapos supplémentaires...

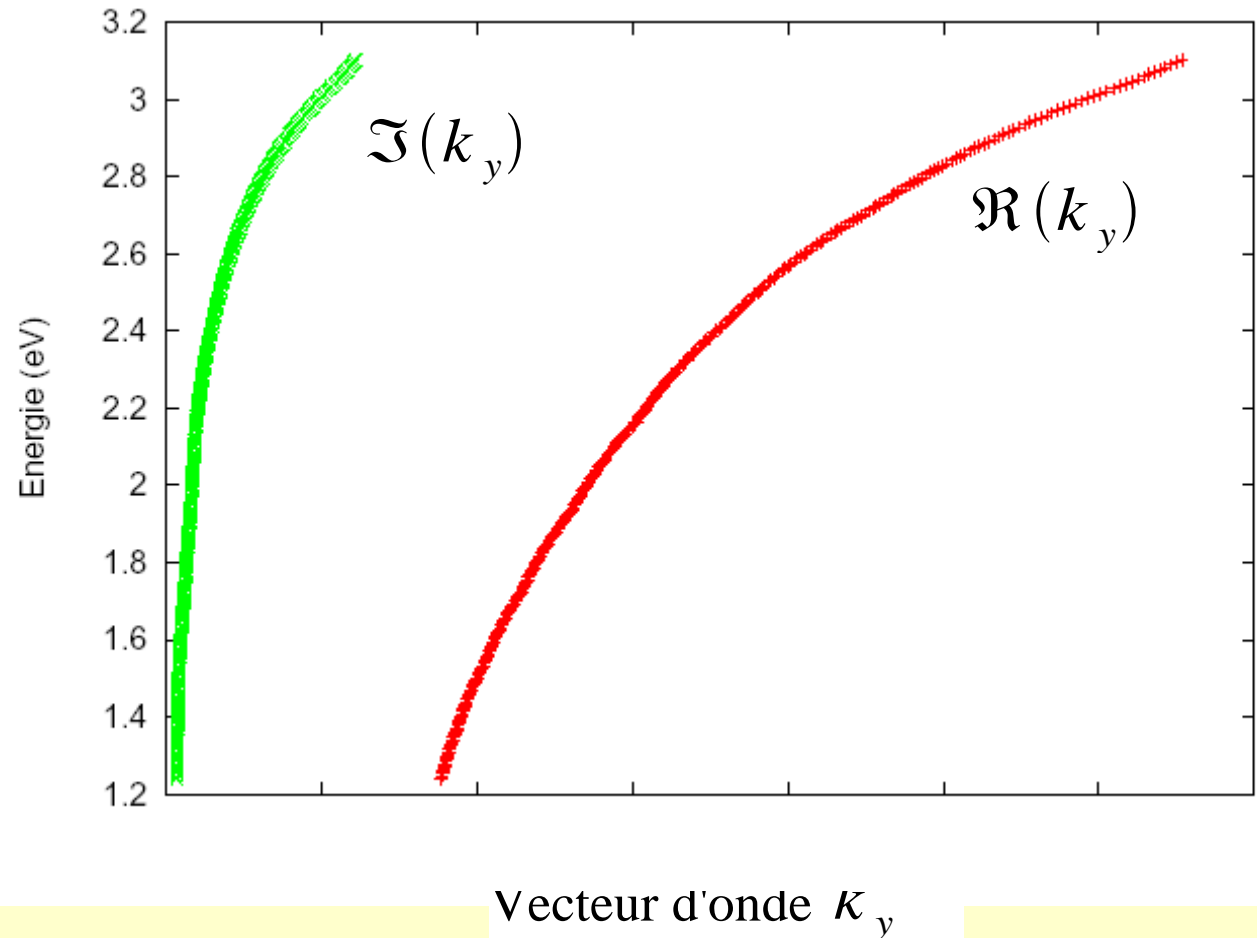
Miniaturisation: cavité d'échelle nanométrique

Recherche de géométries très fortement
sub-longueur d'onde qui résonnent dans le visible...

Réseau Argent
période 200nm
 $w=1\text{nm}$ (10Å)

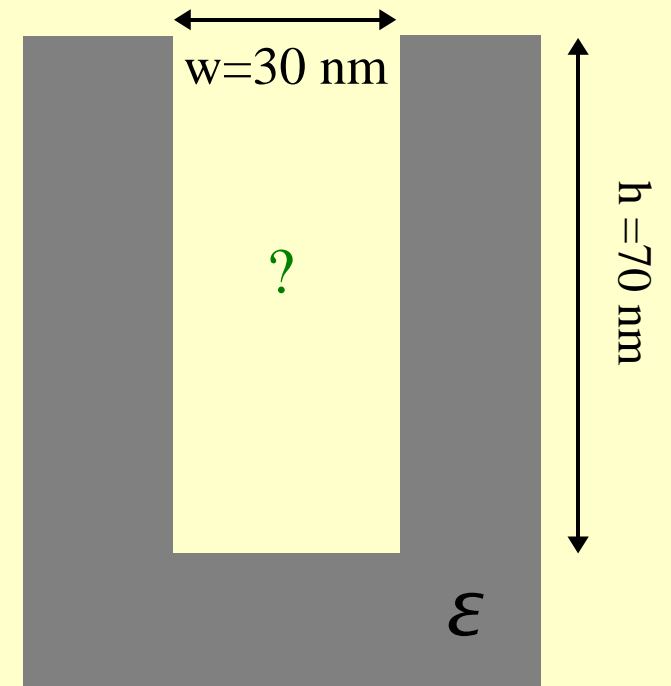
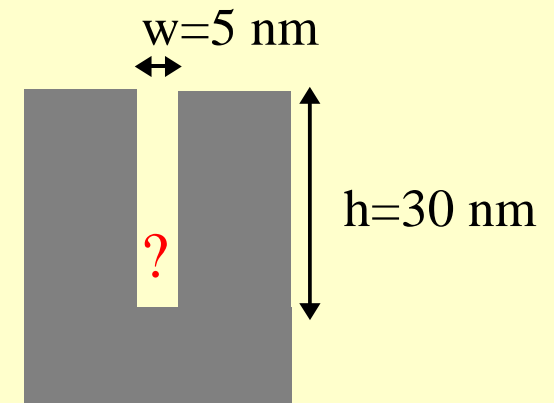
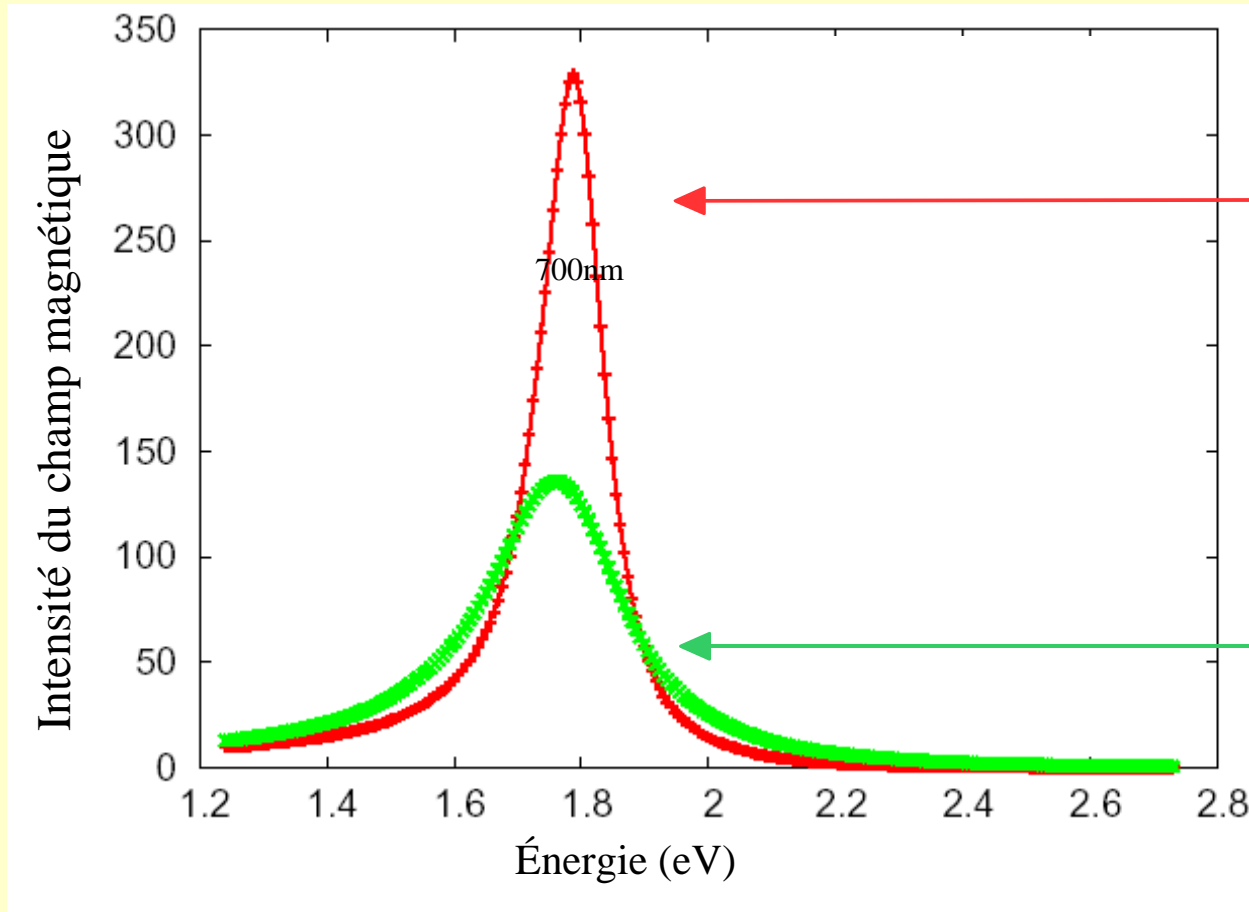
Milieu hautement propagatif

$$k_y \approx \frac{2}{w(-\varepsilon)}$$



Différentes géométries résonnant à la même fréquence

Réseau en Argent de période $d=300$ nm, dans le visible



- 1) On a *conservation* de la fréquence de résonance
- 2) La *plus petite* cavité résonne *mieux*