



HAL
open science

Guidage optique dans les cristaux plasmoniques 1D et 2D

Cyrille Billaudeau

► **To cite this version:**

Cyrille Billaudeau. Guidage optique dans les cristaux plasmoniques 1D et 2D. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2007. Français. NNT : . tel-00239406

HAL Id: tel-00239406

<https://theses.hal.science/tel-00239406v1>

Submitted on 5 Feb 2008

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.

THÈSE

présentée par

Cyrille BILLAUDEAU

pour l'obtention du

GRADE DE DOCTEUR EN PHYSIQUE

DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SUD 11

Laboratoire d'accueil : Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, LPN-CNRS
Groupe Physique des Dispositifs

École Doctorale : Ondes et Matière

GUIDAGE OPTIQUE DANS LES CRISTAUX PLASMONIQUES 1D ET 2D

Soutenue le 16 novembre 2007

Composition du jury :	M. Philippe	LALANNE	Président du Jury
	M. Jean-Jacques	GREFFET	Rapporteur
	M. Hervé	RIGNEAULT	Rapporteur
	M. Pascal	ROYER	Examineur
	M. Jean-Luc	PELOUARD	Directeur de thèse
	M. Stéphane	COLLIN	Co-Directeur de thèse

*À ma grand-mère,
À mes parents*

Remerciements

Après 3 années de thèse, il est temps pour moi de remercier l'ensemble des personnes pour leurs aides scientifiques, informatiques, administratives ou pour leur soutien au quotidien.

Tout d'abord, je remercie sincèrement Monsieur Jean-Jacques Greffet et Monsieur Hervé Rigneault pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce manuscrit, ainsi que Monsieur Philippe Lalanne et Monsieur Pascal Royer pour m'avoir fait l'honneur de faire partie du jury.

Le travail présenté dans ce manuscrit s'est déroulé au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (LPN) du CNRS à Marcoussis. Je remercie Monsieur Jean-Yves Marzin de m'y avoir accueilli.

Mes trois années de thèse se sont passées au sein de l'équipe "Physique des Dispositifs" du LPN. Je tiens remercier Stéphane Collin, Fabrice Pardo et Jean-Luc Pelouard pour l'encadrement de ma thèse.

J'adresse un grand merci pour l'excellent encadrement de Stéphane qui par son enthousiasme, sa passion pour son travail et sa rigueur a parfaitement su gérer son premier thésard. Je lui suis sincèrement reconnaissant pour sa disponibilité et son aide.

Merci également à Fabrice, un passionné de sciences et de technologies, toujours prêt à aider pour expliquer un nouveau phénomène rencontré au détour d'un calcul ou d'une mesure.

Bien évidemment, je remercie Jean-Luc, mon directeur de thèse, qui m'a toujours donné les moyens humains et financiers pour faire avancer l'ensemble de mes travaux de recherche.

J'ai également eu la chance durant ma thèse de découvrir le travail en salle blanche. Cette initiation s'est fait naturellement grâce à la présence de Stéphane, mais aussi de Nathalie Bardou et Christophe Dupuis. Je les remercie pour la qualité de leurs aides, mais aussi pour la bonne humeur et la gentillesse qui les caractérisent et qui facilitent le travail en équipe.

Je ne manquerai pas de remercier les deux thésards qui ont partagé le même bureau que moi au LPN : Christophe Arnold et Grégory Vincent. J'ai passé 3 bonnes années à vos côtés que ce soit au labo, en conférence (Toulouse :)), ou en soirée à Panam' le temps d'une bonne bouffe et d'un poker ! Je vous souhaite évidemment beaucoup de courage pour la suite ! Merci également aux thésards de Phydis et du LPN avec qui j'ai pu discuter et m'amuser : Hicham, Mélania, Thomas, ...

J'aimerai également remercier Nicolas Allemandou, Gilbert Chanconie et Laurent Merzeau pour leur aide dans la conception et la réalisation de la manip.

Merci aussi à Dorothée, Melissa et Marina pour leurs aides dans tout les tracas administratifs que l'on rencontre pour une conférence, une inscription ou l'encadrement des élèves.

Bien évidemment l'ensemble de ce travail n'aurait pas été possible grâce au soutien de mes proches et amis, il est temps pour moi de leur rendre honneur.

Tout d'abord à mes parents qui m'ont toujours soutenu dans mes différents choix. Je vous suis infiniment reconnaissant pour tous les efforts et les sacrifices pour vos enfants. Tout d'abord, ma mère pour laquelle quelques lignes ne suffiront pas à lui rendre complètement honneur vu le temps et l'énergie qu'elle n'a cessé d'accorder à la famille. Tu as démontré à tes 3 enfants ta bonté et ta générosité. À nous maintenant d'en faire autant. Je tiens à remercier mon père qui a su transmettre sans imposer les valeurs les plus nobles à ses enfants. Je t'en suis infiniment reconnaissant. Bien sûr je remercie également mon frère et ma soeur.

Je ne peux évidemment pas m'empêcher de saluer et remercier les "Gars d'Chau-mes" : Alex, Bibo, Florian, Ismahne, Jéré, Rico. Étant donné le temps passé chez eux cette dernière année, je tiens spécialement à remercier Ismahne et Jéré pour m'avoir accueilli et supporté (dans tous les sens du termes). Cette bande de potes désormais éparpillés en France, en Espagne et en Suisse ont contribué de manière indirecte à mon parcours et je n'oublierai pas ces excellents moments passés avec eux en soirée, en vacances ou lors de la construction d'une cabane ! :)

Mon passage sur Mars' m'a également permis de me faire une autre bande de potes avec lesquelles j'ai passé des soirées de folies, au grand dam de mes voisins (mais "c'est le jeu ma pauvre Lucette !"). Donc merci à Seb, Falt, Fab, Dirty, Nico et Joris. Je ne peux évidemment pas oublier celle avec qui je suis remonté dans le nord et qui a partagé une bonne tranche de vie à mes cotés pendant la thèse : merci Anneso et bon courage à ton tour.

Table des matières

Introduction générale	1
1 Guides plasmoniques	7
1.1 Polaritons-plasmons de surface	7
1.2 Plasmonique : intérêts et applications	10
1.3 Plasmons de surface sur une interface plane	15
1.3.1 Relation de dispersion	15
1.3.2 Longueur de propagation et confinement	17
1.4 Guides plasmoniques : développements récents	20
1.5 Bilan et objectif de la thèse	28
2 Cristaux plasmoniques : propriétés générales et fabrication	31
2.1 Plasmons de surface sur une interface nanostructurée périodiquement	32
2.1.1 Anomalies de Wood	32
2.1.2 Relation de dispersion des réseaux métalliques	34
2.1.3 Dispersion des plasmons de surface d'un réseau métallique 1D	36
2.2 Modélisation électromagnétique	38
2.2.1 Méthode modale	38
2.2.2 Formalisme de la matrice S	40
2.3 Procédés de fabrication des échantillons	43
2.3.1 Contraintes de fabrication	43
2.3.2 Description des différentes étapes de fabrication	44
2.3.3 Justification du procédé de fabrication	47
2.3.4 Bilan et réalisation d'échantillons	52
2.4 Conclusion	54
3 Caractérisations optiques résolues angulairement et spectralement	55
3.1 Présentation générale du dispositif expérimental	56
3.1.1 Objectifs attendus pour le banc de caractérisation	56
3.1.2 Description simplifiée du montage	56

3.1.3	Étude angulaire des échantillons	57
3.1.4	Système de focalisation	59
3.2	Le spectromètre à transformée de Fourier	60
3.2.1	Principe du spectromètre à transformée de Fourier	60
3.2.2	Limites physiques fondamentales et résolution	62
3.2.3	Traitement du spectre	67
3.3	Performances et Perspectives	68
3.3.1	Performances optiques	68
3.3.2	Performances des détecteurs et des polariseurs	69
3.3.3	Bilan du banc de caractérisation	73
3.4	Conclusion	73
4	Cristaux plasmoniques 1D : contrôle de la propagation et de l'émission de lumière	75
4.1	Diagrammes de transmission résolus en angle et en fréquence	76
4.1.1	Spectres de transmission d'un réseau métallique	76
4.1.2	Diagramme de transmission $T(\sigma, k_x)$	78
4.2	Modulations des pertes	87
4.2.1	Mises en évidence expérimentale et numérique	88
4.2.2	Nature des pertes	93
4.2.3	À quel système faut-il se comparer?	94
4.2.4	Modèle analytique - Résonances de Fano couplées	97
4.3	Vers un contrôle du régime de propagation	100
4.3.1	Influence des paramètres du réseau	101
4.3.2	Influence de l'indice du substrat	102
4.4	Application des guides plasmoniques aux lasers à cascades quantiques	105
4.4.1	Guides plasmoniques dans les lasers à cascades quantiques	105
4.4.2	Résultats obtenus et discussion	107
4.5	Conclusion	109
5	Cristaux plasmoniques 2D anisotropes : couplages croisés et modes lents	111
5.1	Relations de dispersion d'un cristal plasmonique 2D	114
5.2	Cristaux plasmoniques 2D épais	117
5.2.1	Diagrammes de dispersion	117
5.2.2	Couplage croisé entre 3 plasmons de surface	122
5.2.3	Propriétés des modes couplés	126
5.3	Cristaux plasmoniques 2D minces	128
5.3.1	Diagrammes de transmission	128
5.3.2	Couplage croisé des modes $(-1, 0)$ et $(0, \pm 1)_a$	130

5.3.3	Modulation des pertes	132
5.4	Conclusion	133
	Conclusion générale	135
	A Relation de dispersion d'un plasmon de surface	139
	B Indices optiques	141
B.1	Modèle de Drude pour l'or	141
B.2	Indice du GaAs	143
	C Modes du film métallique	145
C.1	Équation des modes du film métalliques	145
C.2	Film métallique épais	146
C.3	Film métallique mince	146
C.3.1	Cas symétrique ($\epsilon_1 = \epsilon_3$)	146
C.3.2	Cas asymétrique ($\epsilon_1 < \epsilon_3$)	148
	Références bibliographiques	160

Introduction générale

Le développement des nanotechnologies au cours des 20 dernières années a permis l'émergence de nouveaux matériaux pour la *nanophotonique*, tels que les cristaux photoniques, les nanostructures métalliques ou plus récemment les méta-matériaux. La réalisation de ces composants repose sur une structuration sub-longueur d'onde de matériaux diélectriques ou métalliques. Cette structuration offre de nouvelles possibilités pour contrôler la propagation des ondes électromagnétiques (direction, vitesse de groupe, pertes), et permet par exemple la réalisation de guides d'onde de très faibles dimensions latérales, ou le confinement de la lumière dans des volumes extrêmement faibles. Il est également possible d'obtenir avec les méta-matériaux des indices optiques "effectifs" qui n'existent pas dans la nature. D'une manière générale, les nanostructures permettent une augmentation des interactions lumière-matière, avec de nombreuses applications en photonique et en opto-électronique dans les domaines de l'émission, de la détection, de l'imagerie ou du guidage optique.

Ces dernières années, l'étude de l'interaction de la lumière avec les nanostructures métalliques, la *plasmonique*, a connu un vif intérêt. La raison vient de la particularité des *plasmons de surface*, qui permettent la propagation de la lumière non pas dans le volume d'un matériau diélectrique, mais le long d'une interface. Plus précisément, ce sont des ondes évanescentes qui se propagent à l'interface entre un métal et un diélectrique, et qui sont couplées aux oscillations des électrons libres du métal. Dans le milieu diélectrique, la longueur d'atténuation transversale du champ électromagnétique est de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde pour l'or, tandis que dans le métal elle est de l'ordre de l'épaisseur de peau optique (25 nm).

Depuis leur mise en évidence, les plasmons de surface ont permis de proposer des solutions nouvelles pour des dispositifs de détection, de guidage ou d'émission de lumière. Ainsi, les plasmons de surface sont très sensibles à l'environnement proche des métaux. Une petite modification de l'indice optique près de l'interface change leur condition de résonance sur un film métallique. En mesurant ce décalage, il est

possible de détecter la présence de seulement quelques molécules au voisinage d'un film métallique, et de réaliser ainsi des détecteurs très sensibles par exemple pour l'analyse de molécules isolées en biologie ou en chimie.

La propriété principale des plasmons de surface est de guider la lumière le long d'une interface entre un métal et un diélectrique. Contrairement aux guides d'onde diélectriques, la lumière est naturellement confinée près d'une interface. De nombreuses recherches se sont concentrées récemment sur l'optimisation des pertes de propagation, et sur les possibilités d'ajouter un confinement latéral (dans le plan de l'interface) au confinement vertical naturel des ondes évanescentes.

Les guides plasmoniques ont d'ores et déjà été intégrés dans des émetteurs. En effet, l'apparition des lasers à cascades quantiques a permis la réalisation de sources de lumière qui émettent dans le moyen et lointain infrarouge (typiquement entre 2 et 100 μm). Mais aux grandes longueurs d'onde, la fabrication de guides diélectriques (semiconducteurs) devient très délicate, à cause des grandes épaisseurs mises en jeu. Les guides plasmoniques ont permis de résoudre simplement ce problème et d'optimiser le recouvrement des ondes électromagnétiques avec la zone active des lasers. Plusieurs inconvénients subsistent néanmoins : l'absorption de la lumière par le métal, et la difficulté de concevoir un laser à cascades quantiques à émission verticale. Ajoutons qu'il serait intéressant pour le fonctionnement de ces sources d'intégrer aux guides plasmoniques des propriétés de sélectivité spectrale.

Ces différents exemples illustrent l'intérêt grandissant pour l'utilisation des plasmons de surface dans des dispositifs actifs. Pour cela, il est nécessaire de contrôler les propriétés des plasmons de surface, ce que l'on peut espérer faire en structurant périodiquement les interfaces métalliques. L'objectif est évidemment de modifier les propriétés dispersives, le couplage radiatif ou encore le guidage des plasmons de surface. À ce titre, les travaux d'Ebbesen sur la transmission "extraordinaire" de la lumière à travers un film métallique percé périodiquement de trous sub-longueur d'onde sont certainement marquants. Ils ont suscité de nombreuses études théoriques et expérimentales, qui ont permis de mieux comprendre les mécanismes mis en jeu. Elles ont également mis en évidence la richesse de ces structures, en particulier sur la position et le facteur de qualité des résonances plasmoniques. Néanmoins, l'ingénierie des plasmons de surface par des nanostructures métalliques est encore loin d'être maîtrisée. Nous pensons que c'est en particulier dû au fait que les caractérisations optiques ont été essentiellement réalisées dans les domaines visible ou proche infrarouge. La forte absorption dans les métaux à ces fréquences rendent par exemple délicate l'interprétation des diagrammes de dispersion obtenus par des mesures de transmission. Par ailleurs, les études de films métalliques percés de trous se sont

essentiellement focalisées sur la question de la transmission, et encore assez peu sur la question du guidage des plasmons de surface sur les interfaces structurées.

Cette étude a pour objectif de rejoindre à la question de base suivante : “Comment, d’une manière générale, une structuration périodique permet de modifier les propriétés de guidage des plasmons de surface”. Notre point de départ est un des guides plasmoniques les plus simples, constitué d’un film métallique déposé sur un substrat diélectrique (en GaAs dans notre cas). La réalisation d’ouvertures périodiques de taille nanométrique dans ce film métallique conduira à l’obtention d’un *guide plasmonique nanostructuré 1D ou 2D* (fentes ou trous), qui pourra également être considéré comme un *cristal plasmonique 1D ou 2D*. Ces structures sont représentées dans la Fig. 1.

Nous cherchons à comprendre comment les effets de couplage entre plasmons de surface, non seulement sur une interface, mais également entre les deux interfaces (plasmons de surface air/métal et substrat/métal), permettent de modifier leurs propriétés de guidage, en particulier : leur vitesse de groupe, et leurs pertes radiatives et non radiative (absorption, couplage avec l’espace libre,...).

Dans les guides plasmoniques nanostructurés 1D, nous étudierons les moyens pour moduler les pertes, notamment celles liées au couplage radiatif, et d’apporter si possible des fonctionnalités supplémentaires comme la sélectivité spectrale. Pour obtenir de tels effets dans ces guides, nous exploiterons le mécanisme de couplage entre les plasmons de surface air/métal et substrat/métal.

Par ailleurs, nous chercherons à comprendre comment les plasmons de surface se propageant sur une interface dans différentes directions peuvent se coupler via les trous d’un réseau 2D. Pour mieux différencier les phénomènes, nous étudierons un réseau anisotrope, *i.e.* un cristal plasmonique 2D ayant une maille rectangulaire, et nous réaliserons des mesures optiques sur une large gamme spectrale.

L’étude de ces phénomènes est avant tout basée sur des résultats expérimentaux. Nous avons développé à cet effet un procédé de fabrication qui permet la réalisation de ces structures sur de grandes surfaces, avec une attention particulière à la rugosité et à l’homogénéité. Par ailleurs, l’étude des cristaux plasmoniques a été menée à l’aide de mesures en réflexion/transmission faites sur un banc optique, construit à cet effet et dont les performances (résolutions spectrale et angulaire) ont été adaptées aux besoins de cette étude. En effet, la mesure des diagrammes de transmission est un moyen pour déterminer expérimentalement les diagrammes de dispersion des cristaux plasmoniques étudiés. Nous verrons que la position des résonances permet évidemment de déterminer la dispersion des modes de surface, mais que les modulations de l’amplitude permettent également de mettre en évidence de manière précise les modulations des pertes radiatives des plasmons de surface.

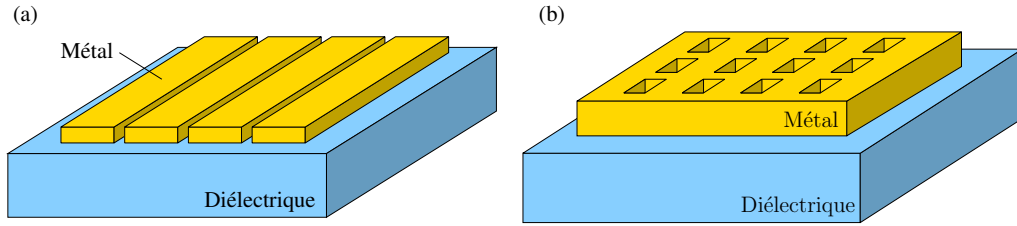


FIG. 1 – Films métalliques déposés sur un substrat diélectrique et structurés périodiquement (a) dans une direction (fentes) et (b) dans deux directions (trous).

Dans le chapitre 1 nous présenterons les propriétés générales des plasmons de surface ainsi que leurs applications courantes dans les domaines de l'émission, de la détection et du guidage de la lumière. Ce dernier point fera l'objet d'une description plus détaillée avec un état de l'art des guides plasmoniques.

Dans le chapitre 2, nous présenterons une première description, approchée, de l'effet de la structuration périodique d'une interface métallique sur la dispersion des plasmons de surface. Nous présenterons également le modèle électromagnétique utilisé dans le chapitre 4, et le procédé de fabrication mis au point pour la réalisation des échantillons étudiés au cours de cette thèse.

Le banc de caractérisation optique développé pour l'étude expérimentale des réseaux métalliques et de leurs propriétés dispersives est présenté dans le chapitre 3. Il permet les mesures résolues angulairement et spectralement de réflexion et de transmission de la lumière sur des films métalliques perforés. L'emploi d'un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier permet alors de caractériser les guides plasmoniques nanostructurés sur une large gamme spectrale ($\lambda = 1 - 12 \mu\text{m}$). Ces mesures seront présentées dans les chapitres 4 et 5.

Le chapitre 4 est consacré à l'étude des guides plasmoniques nanostructurés 1D (figure 1(a)). Nous mettrons en évidence deux régimes de propagation sur ces structures. Le couplage entre les plasmons de surface se propageant sur les interfaces air/métal et substrat/métal permet soit d'augmenter l'émission de lumière dans un *régime radiatif*, soit de diminuer le couplage avec l'espace libre dans un *régime de propagation à faibles pertes*. On montrera que l'on peut contrôler le régime de propagation en changeant l'indice du substrat. Cet effet ouvre de nouvelles perspectives pour le contrôle de l'émission et de la propagation de la lumière. On discutera notamment de l'application de ces structures aux lasers à cascades quantiques.

Le chapitre 5 est dédié à la description des modes de surface excités dans un cristal plasmonique 2D anisotrope, *i.e.* avec des périodes différentes dans les deux axes principaux du réseau. Dans un cristal plasmonique 2D épais (figure 1(b)), nous mettrons en évidence un couplage entre plusieurs plasmons de surface se propageant

dans des directions quasi-orthogonales. L'un des modes couplés montre un fort couplage radiatif et une bande plate dans les diagrammes de dispersion traduisant une faible vitesse de groupe. La position de ces modes couplés dans le diagramme de dispersion (k, σ) peut être ajustée à l'aide des périodes de cette structure. Nous étudierons également le cas des guides plasmoniques 2D anisotropes minces. Nous mettrons en évidence une modification des pertes radiatives comme c'est le cas pour les guides plasmoniques 1D de faibles épaisseurs.

L'ensemble des résultats présentés dans ce manuscrit montrera ainsi comment la structuration 1D et 2D de films métalliques permet de modifier non seulement la dispersion des modes de plasmons de surface, mais également leurs pertes (couplages radiatifs et non radiatifs). Ces propriétés offrent de nouvelles possibilités pour la conception de guides plasmoniques et leur intégration dans des dispositifs opto-électroniques.

Chapitre 1

Guides plasmoniques

L'objet de ce chapitre est de présenter les activités liées à la plasmonique. Sans être exhaustif, nous allons décrire les domaines d'application les plus courants mettant en jeu des plasmons de surface dans les structures métalliques.

Nous commencerons par présenter les polaritons-plasmons de surface excités sur une interface plane entre un métal et un diélectrique. Après quoi, nous décrirons les applications des plasmons de surface dans les domaines de la détection, de l'émission et du guidage optique. Ce dernier point fera l'objet d'une présentation plus détaillée avec une description des guides plasmoniques classiquement étudiés dans la littérature et notamment l'intérêt et les limitations de ces structures. Nous terminerons ce chapitre par une présentation des objectifs de la thèse.

1.1 Polaritons-plasmons de surface

Depuis l'antiquité, les nanoparticules métalliques sont utilisées pour leurs propriétés optiques particulières. La coupe de Lycurgus (début de l'empire Byzantin) est restée célèbre parce que sa couleur est différente selon qu'elle est éclairée de l'intérieur ou de l'extérieur : en lumière diffusée en réflexion elle est de couleur verte, alors qu'en transmission elle apparaît rouge (Fig. 1.1). Les procédés de fabrication de ces verres, qui étaient empiriques, n'ont été compris que très récemment [1]. Un autre exemple marquant est celui de certains vitraux d'églises : en incorporant des nanoparticules métalliques (or, argent, ...) dans les matrices de verre, les maîtres verriers du Moyen-Âge donnaient à leurs vitraux des couleurs très intenses (Fig. 1.1). Bien que l'or et l'argent apparaissent jaune et gris lorsqu'ils sont massifs, leurs couleurs diffèrent lorsqu'ils sont sous forme de particules métalliques de dimensions inférieures à la longueur d'onde. On sait désormais que cette propriété résulte de

1.1. Polaritons-plasmons de surface

l'excitation de résonances plasmons dans les nanoparticules métalliques. Ces résonances dépendent de la nature du métal utilisé mais aussi de la taille et de la forme des nanoparticules.



FIG. 1.1 – (En haut) Coupe de Lycurgus : le verre apparaît de couleur verte à la lumière du jour (la lumière est alors réfléchiée par la coupe), mais de couleur rouge lorsque la lumière est transmise depuis l'intérieur de la coupe. (En bas) Exemples de vitraux : contrairement à ce que l'on pourrait croire sur ces deux photographies la couleur jaune or est en réalité obtenue par l'excitation de nanoparticules d'argent. C'est le jaune d'argent.

Pour décrire les propriétés électroniques d'un métal, on considère les électrons de conduction en première approximation comme quasi-libres, *i.e.* le mouvement d'un électron est indépendant du mouvement individuel d'un autre électron. Ces électrons libres, formant un gaz d'électrons sont responsables des propriétés électriques et optiques des métaux. Dans un métal, le gaz d'électrons libres peut se mettre à osciller collectivement et ce déplacement longitudinal de la densité de charge est un *plasmon* dont le quantum d'énergie est $\hbar\omega_p$ où ω_p est la fréquence plasma qui s'exprime en fonction du matériau comme :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{N_e e^2}{\epsilon_0 m_e}}, \quad (1.1)$$

où N_e représente la densité d'électrons, e la charge de l'électron, ϵ_0 la constante diélectrique du vide et m_e la masse de l'électron.

On distingue deux types de plasmons. Dans un métal massif, l'oscillation collective du gaz d'électrons est appelée *plasmon de volume*, tandis qu'à l'interface entre un métal et un diélectrique elle est appelée *plasmon de surface*. Dans le reste de ce manuscrit nous traiterons uniquement le cas des plasmons de surface.

Nous pouvons désormais introduire la notion de *polariton-plasmon de surface*. Un polariton désigne un mode couplé entre un photon et une autre particule (électron, plasmon, phonon, ...). Un polariton-plasmon de surface est le mode couplé entre une onde électromagnétique et une oscillation des électrons libres à la surface d'un métal. La fréquence d'oscillation de ces modes est alors donnée par sa relation de dispersion pour un vecteur d'onde donné. Les polaritons-plasmons de surface, également appelés plus brièvement plasmons de surface, sont des phénomènes d'interface : le champ est évanescent dans chacun des milieux. L'énergie des plasmons de surface est très fortement localisée au niveau de l'interface entre le métal et le diélectrique.

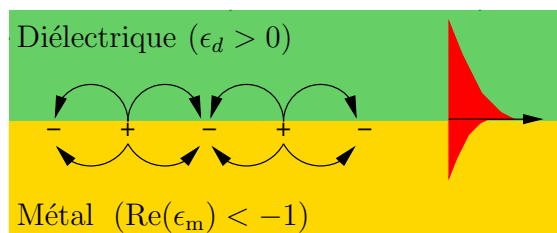


FIG. 1.2 – Lignes de champ électrique et vue schématique de l'amplitude du plasmon de surface (en rouge) à l'interface d'un métal et d'un diélectrique.

Il existe différents moyens pour exciter un polariton-plasmon de surface à l'interface d'un métal, par exemple avec un électron de haute énergie ou avec une onde électromagnétique. Seul ce dernier cas sera considéré ici. Par ailleurs, le caractère évanescent de l'onde associée au plasmon de surface empêche toute excitation directe par une onde plane. Les techniques classiques pour exciter un plasmon de surface utilisent la réflexion totale interne ou la diffraction de la lumière par un réseau.

Nous reviendrons sur les propriétés des plasmons de surface se propageant à l'interface plane entre un métal et un diélectrique au § 1.3. Dans la section qui suit, nous présentons les applications les plus courantes en plasmonique dans les domaines de la détection, l'émission et le guidage optique. Ce dernier sera décrit plus précisément au § 1.4.

1.2 Plasmonique : intérêts et applications

Durant la dernière décennie, l'étude des nanostructures métalliques a mis en évidence des phénomènes surprenants et des applications très prometteuses comme la transmission extraordinaire [2,3], les guides à plasmons de surface [4] et plus récemment les méta-matériaux [5,6]. L'intérêt porté à l'étude des dispositifs plasmoniques s'explique par les propriétés inhabituelles de confinement et d'exaltation du champ électromagnétique au voisinage d'une interface métallique.

Depuis la mise en évidence de l'existence de mode de plasmon de surface au voisinage de la surface d'un métal en 1957 [7], la plasmonique connaît un intérêt croissant. Les premières études ont montré comment exciter optiquement les plasmons de surface en réflexion totale interne sur un prisme [8]. Très rapidement, les chercheurs ont su exploiter les propriétés des plasmons de surface pour exalter la diffusion Raman (SERS) [9]. Au début des années 90, l'étude des dispositifs plasmoniques est stimulée par le développement et la commercialisation du premier détecteur biologique fonctionnant sous le principe de la résonance de plasmon de surface. Le développement d'outils de modélisation électromagnétique combiné aux progrès des techniques de nanofabrication ont été exploités pour réaliser des guides métalliques avec un confinement optique sub-longueur d'onde ou encore pour exalter la transmission de la lumière dans les réseaux métalliques de trous. Les applications majeures en plasmonique dans les domaines de la détection, de l'émission et du guidage sont présentées ici.

Détection

Détection SPR

De nombreux senseurs biologiques reposent sur le principe de la résonance de plasmon de surface [10,11]. Prenons le cas d'un film métallique déposé sur un prisme (Fig. 1.3). Le milieu étudié circule au dessus du film métallique, éventuellement en interagissant avec des molécules greffées sur celui-ci. L'objectif de la détection SPR est de mesurer d'infimes variations de l'indice de réfraction à la surface du film. La réflexion spéculaire sur le film à travers le prisme est proche de 100 % sauf lorsque l'on excite le polariton-plasmon de surface, qui dissipe l'énergie incidente dans le métal. En variant l'indice à longueur d'onde fixe, ou en variant la longueur d'onde à incidence fixe, on observe un fin pic correspondant à un minimum de réflexion, et la position de ce pic est directement liée à l'indice de réfraction que l'on souhaite mesurer.

Cette technique est très efficace car les plasmons de surface sont des ondes évanescentes très sensibles à l'environnement proche de l'interface, ce qui en fait de très bons détecteurs (détecteurs de gaz, senseurs biologiques,..). À titre d'exemple,

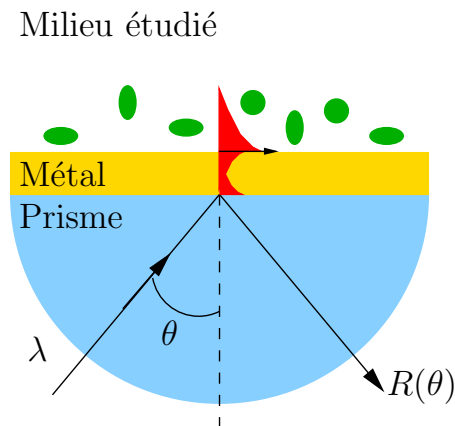


FIG. 1.3 – Schéma de principe d’un détecteur SPR : la réflexion spéculaire d’une onde monochromatique est mesurée en fonction de l’angle d’incidence θ . L’excitation d’un plasmon de surface se traduit sur les spectres par un minimum de réflexion qui dépend des propriétés du métal et du milieu étudié.

les limites de sensibilité de ces détecteurs ont été récemment repoussés grâce à une diode superluminescente et l’excitation de “long range surface plasmon” (Cf. guidage § 1.4) [12]. Les auteurs montrent alors que des performances excellentes sont atteintes avec une sensibilité sur l’indice optique de 2.5×10^{-8} .

Aujourd’hui, les détecteurs basés sur la résonance de plasmon de surface sont des outils très appréciés en biologie du fait de leur simplicité d’utilisation. Ils permettent aussi bien l’étude des interactions entre protéines et ADN [13] que la détection d’anticorps et d’antigènes [14]. Enfin, ces dispositifs peuvent fonctionner en temps réel pour suivre l’évolution d’espèces chimiques ou biologiques au cours de réactions [15].

Diffusion Raman exaltée de surface

Il existe également une technique différente pour la détection et l’analyse de molécules sans qu’une pré-fonctionnalisation des détecteurs soit nécessaire. Il s’agit de la technique SERS (Surface-Enhanced Raman Scattering) [9]. Elle repose sur l’effet Raman [16] (ou diffusion Raman) issu de l’interaction lumière-matière : la lumière incidente est diffusée de façon inélastique dans un processus mettant en jeu l’émission (processus Stokes) ou l’absorption (processus anti-Stockes) d’un phonon. Le spectre de la lumière diffusée comprend une raie intense à la fréquence d’excitation ω_p et deux autres raies satellites de plus faible intensité centrées sur $\omega_p \pm \Omega_R$. La fréquence Ω_R est celle du phonon mis en jeu, elle est donc spécifique du matériau diffuseur ce qui permet son étude (modes de vibration, analyse chimique). Malheureusement la probabilité de ce processus est très faible en particulier dans le cas de molécules individuelles. Un grand nombre de molécules est alors nécessaire pour

augmenter l'intensité des raies. Cela peut poser un problème en pratique, si leur nombre est limité dans les échantillons donnés à l'expérimentateur. Une solution élégante consiste à augmenter l'intensité du champ à la surface de l'échantillon pour augmenter l'effet Raman. Les molécules étudiées sont placées sur un film métallique et en excitant un plasmon de surface à l'interface du métal, on peut augmenter l'efficacité de cette technique.

La question du mécanisme d'exaltation de la diffusion Raman par les plasmons de surface est encore ouverte. Deux hypothèses sont actuellement avancées : l'augmentation du champ électromagnétique ou l'augmentation de la polarisation de la molécule étudiée.

Spectroscopie de fluorescence

La microscopie de fluorescence est une technique largement utilisée pour l'étude des systèmes biologiques, en particulier pour la détection de molécules. La fluorescence est un processus d'émission de lumière résultant de la désexcitation de molécules. Pour cela, on place des marqueurs, les fluorophores, sur la molécule à étudier et on l'éclaire. L'absorption des photons incidents permet de peupler les niveau d'énergies supérieures. Ces états excités se relaxent de deux manières possibles : soit directement par émission d'un photon (c'est le phénomène de fluorescence) ou soit indirectement par des mécanismes non-radiatifs et par émission d'un photon (on parle alors de phosphorescence).

La microscopie de fluorescence est très utile pour l'étude des molécules uniques. Cependant l'intensité mesurée est parfois trop faible pour être détectée. Pour résoudre ce problème, les molécules fluorescentes peuvent être placées au voisinage d'un objet métallique. L'excitation de plasmons de surface permet d'exalter le champ électromagnétique au niveau du fluorophore et d'améliorer l'efficacité de cette technique. L'émission d'une molécule fluorescente unique, exaltée par l'excitation d'un plasmons de surface sur un film métallique, est alors détectable avec un bon rapport signal sur bruit [17].

Un autre approche a été proposée pour augmenter l'émission des molécules fluorescentes en les déposant dans un trou circulaire sub-longueur d'onde d'un film métallique [18]. Cette expérience a démontré que la présence de la nanostructure permet d'augmenter le taux de fluorescence par molécule jusqu'à un facteur 6 selon le diamètre du trou. Cela laisse des perspectives intéressantes pour l'étude des molécules uniques car le trou percé dans le film métallique permet de limiter le volume d'observation en deçà de la limite de diffraction.

Émission

La faible consommation et l'excellente fiabilité des diodes électroluminescentes sont à l'origine de leur grande popularité dans les applications courantes (éclairage pour vélo, affichages électroniques ou feux de circulation). À terme, on peut espérer généraliser ces composants en tant que sources de lumière pour l'éclairage domestique. Il est utile d'améliorer les performances de ces structures, en particulier l'extraction de lumière et les pertes optiques. Une des limitations actuelles des diodes organiques ou inorganiques est due à l'excitation de plasmons de surface à l'interface de la couche active et du contact métallique [19]. Une solution pour récupérer une partie de cette énergie consiste à coupler radiativement les modes de plasmon de surface aux ondes planes. Il s'agit par exemple de réaliser un réseau au dessus de l'électrode métallique [20, 21] ou bien de coupler les plasmons de surface créés à l'interface du milieu actif dans un milieu d'indice plus faible [22, 23, 24].

D'autre part, la réalisation de sources cohérentes mettant en jeu des plasmons de surface a été proposée. Citons deux exemples : la source thermique cohérente et le spaser.

En gravant un réseau à la surface d'un métal, il est possible de réaliser des sources thermiques cohérentes pouvant émettre avec une directivité pouvant atteindre 15 mrad, *i.e.* proche des performances atteintes par les lasers à CO₂ [25]. Le principe de ces sources repose sur l'excitation thermique de plasmons de surface, qui sont couplés aux ondes planes par un réseau de diffraction. La directivité de ces sources est assurée par la grande cohérence spatiale des plasmons de surface en champ proche. La même équipe avait mis en évidence la réalisation de sources thermiques cohérentes, non pas avec des plasmons de surface dans un réseau métallique, mais avec des phonons de surface dans un réseau en SiC [26].

Le concept du SPASER (Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation) proposé par Bergman et Stockman est similaire au laser, sauf qu'il n'émet pas de lumière [27]. Au lieu de cela, il génère un champ optique localisé de grande intensité et temporellement cohérent. Les spasers sont constitués de nanoparticules métalliques jouant le rôle de résonateur dans un milieu actif contenant des émetteurs à deux niveaux comme des boîtes quantiques. L'énergie d'excitation des émetteurs est transformée en champ électrique quasi-statique de modes de plasmons de surface qui sont alors amplifiés.

En 2005, Seidel et *al.* ont franchi un premier pas vers la réalisation des spasers, en démontrant l'amplification des plasmons de surface à l'interface d'un film métallique et d'un milieu à gain (constitué de colorants organiques) [28]. Un pompage optique permet l'inversion de population de ces molécules, qui se dés excitent en cédant une partie de leur énergie aux plasmons de surface par émission stimulée.

Guidage

Les plasmons de surface sont avant tout des ondes électromagnétiques qui se propagent à l'interface d'un métal avec un confinement de la lumière à une échelle de l'ordre de la longueur d'onde. De nombreuses géométries ont été étudiées (films et rubans métalliques, guides métal/diélectrique/métal, ...) et feront l'objet d'une description détaillée au § 1.4.

C'est au sein de cette thématique que se situe ce travail de recherche. Contrairement aux guides plasmoniques "classiques", nous souhaitons apporter de nouvelles fonctionnalités pour contrôler la propagation de la lumière en structurant les guides plasmoniques. Les objectifs et la description de ces guides sont donnés à la fin du chapitre (§ 1.5).

Les lasers à cascades quantiques

Les lasers à cascades quantiques sont de nouvelles sources optiques capables d'émettre dans le moyen et lointain infrarouge ($\lambda = 2 - 100 \mu\text{m}$) [29]. Ce sont des dispositifs unipolaires : contrairement aux lasers à semiconducteurs classiques, l'émission de photons ne résulte pas de la recombinaison d'un électron de la bande de conduction avec un trou de la bande de valence, mais de la désexcitation radiative d'un électron au sein de niveaux d'énergie situés dans la bande de conduction d'une hétérostructure. En effet, en empilant de fines couches de semiconducteurs (de l'ordre du nm), on peut créer grâce au confinement quantique des niveaux d'énergies au sein même de la bande de conduction (ou de valence). L'onde électromagnétique associée aux photons émis est polarisée TM (le champ magnétique est parallèle aux couches épitaxiées).

Deux contraintes limitent le développement des lasers à cascades quantiques. La première est liée à l'épitaxie. Pour émettre suffisamment de lumière, il est nécessaire de répéter un grand nombre de structures élémentaires, afin de maximiser le recouvrement de l'onde électromagnétique et de la structure électronique. Cela impose de très longues heures d'épitaxie pour réaliser la couche active. La deuxième contrainte est liée aux longueurs d'onde d'émission des lasers à cascades quantiques comprises entre $\lambda = 2 - 100 \mu\text{m}$. Cela signifie que les guides d'onde diélectriques utilisés pour guider la lumière dans la structure doivent être suffisamment épais (jusqu'à plusieurs dizaines de μm). Une solution, pour réaliser des guides d'ondes plus fins, est d'utiliser les ondes de surface.

L'emploi des plasmons de surface pour guider la lumière dans les lasers à cascades quantiques a été proposé peu de temps après les premières démonstrations [30, 31]. Les plasmons de surface présentent une polarisation compatible avec les photons émis par les lasers à cascades quantiques et un fort confinement du champ sous

le métal. Par ailleurs, leur emploi est d'autant plus justifié aux grandes longueurs d'onde car les pertes dans le métal diminuent quand λ augmente.

L'étude des guides plasmoniques pour les lasers à cascades quantiques vise en priorité à optimiser le recouvrement du champ électromagnétique avec la structure active en minimisant les pertes (absorption ou désexcitation non-radiatives). Un autre enjeu pour les guides est d'apporter une solution à l'extraction de la lumière du laser. En effet, du fait de l'indice de réfraction élevé des semiconducteurs, la lumière émise dans le laser est très mal transmise par la tranche de la zone active. Une solution pourrait être l'émission de la lumière dans la direction normale à la zone active avec une structure diffractive (Cf. chapitre 4).

1.3 Plasmons de surface sur une interface plane

Nous venons de présenter les principales applications potentielles des plasmons de surface. L'étude présentée dans cette thèse porte sur les guides plasmoniques. Nous présentons dans cette section une introduction aux propriétés générales des plasmons de surface se propageant à l'interface entre un métal et un diélectrique. L'étude détaillée des guides nanostructurés est reportée aux chapitres 4 et 5

1.3.1 Relation de dispersion

Un plasmon de surface est une onde électromagnétique qui se propage à l'interface entre un métal et un diélectrique, couplée à l'oscillation des électrons libres du métal. L'existence de ces modes est directement liée au signe négatif de la partie réelle de la constante diélectrique du métal.

Ces modes obéissent à la relation de dispersion $k_{spp}(\omega)$, où k_{spp} est la composante du vecteur d'onde du plasmon de surface dans la direction de propagation et ω est la fréquence de l'onde. Le calcul de la relation de dispersion des plasmons de surface se propageant le long d'une interface plane est donné dans l'annexe A. À l'interface entre deux milieux semi-infinis diélectrique et métallique, de permittivité diélectrique ϵ_1 et ϵ_2 , représentée sur la Fig. 1.4, la relation de dispersion des plasmons de surface s'écrit :

$$k_{spp} = \frac{k_0}{\sqrt{\frac{1}{\epsilon_1} + \frac{1}{\epsilon_2}}}, \quad (1.2)$$

avec $k_0 = \omega/c = 2\pi/\lambda$ le vecteur d'onde de la lumière dans le vide.

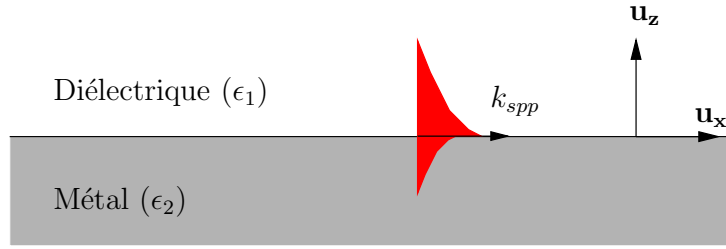


FIG. 1.4 – Représentation schématique d'un plasmon de surface se propageant à l'interface entre deux milieux semi-infinis diélectrique et métallique.

Le métal est un milieu absorbant qui se traduit par une fonction diélectrique complexe. Pour les métaux dits nobles (or, argent, platine), la fonction diélectrique est assez bien décrite dans l'infrarouge par le modèle de Drude :

$$\epsilon_2 = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma} \quad (1.3)$$

où ω_p est la fréquence plasma et $\gamma = 1/\tau_c$ où τ_c est le temps moyen entre deux collisions d'électrons. Une description du modèle de Drude est donnée en annexe B.1. Dans l'éq. 1.3, l'absorption dans le métal est induite par les collisions électroniques (γ). Les solutions ω et k_{spp} satisfaisant la relation de dispersion sont à priori complexes. Pour rechercher les modes de plasmons de surface, deux points de vue peuvent être adoptés. On fixe la fréquence ω à une valeur réelle, et on détermine la solution complexe k_{spp} qui satisfait l'éq. 1.2. La relation de dispersion ($Re(k_{spp}), \omega$) est représentée sur la Fig. 1.5(a). L'autre point de vue consiste à imposer une valeur réelle pour k_{spp} et rechercher la solution complexe pour la fréquence ω , comme le montre la Fig. 1.5(b). On vérifie que les solutions sont identiques pour les fréquences les plus faibles, car les parties imaginaires de ω ou k_{spp} sont petites devant les parties réelles. Néanmoins pour les hautes fréquences, le comportement diffère autour de $\omega = \omega_s = \omega_p/\sqrt{1 + \epsilon_1}$.

Si la résonance a bien lieu pour une valeur complexe de k_{spp} et ω , les conditions d'expérience obligent à mesurer des quantités réelles. Ainsi, les résonances se manifestent par des pics de largeur finie traduisant les pertes. Imaginons l'expérience suivante : on excite un plasmon de surface à l'interface d'un métal en réflexion totale interne [8]. La mesure de la réflexion de la lumière met en évidence l'excitation des plasmons de surface par une résonance centrée sur la fréquence $Re(\omega)$ et pour une incidence vérifiant $Re(k_{spp}) = \omega/c \sin \theta$. La largeur de la résonance n'est pas la même en fonction de la fréquence et du vecteur d'onde. En gardant constante l'incidence mais en changeant la fréquence, on obtient pour le signal mesuré une résonance

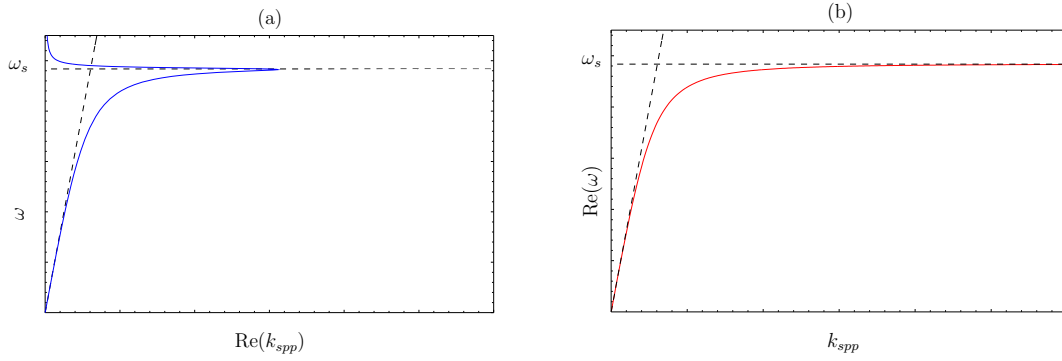


FIG. 1.5 – Relation de dispersion d'un plasmon de surface le long d'une interface métal/diélectrique : (a) calcul avec un vecteur d'onde complexe et une fréquence réelle (b) calcul avec un vecteur d'onde réel et une fréquence complexe.

dont la largeur est proportionnelle à $Im(\omega)$. En mesurant la réflexion autour de la direction de la résonance pour une fréquence fixe, la largeur de la résonance est proportionnelle à $Im(k_{spp})$.

Les résonances de plasmon de surface sont des modes qui perdent de l'énergie au cours du temps. En fonction du point de vue adopté, les pertes sont quantifiées par le temps de vie de la résonance $\tau = 1/|2Im(\omega)|$ (avec la fréquence complexe) ou par la longueur de propagation $\Lambda = 1/|2Im(k_{spp})|$ du plasmon de surface le long de l'interface (avec le vecteur d'onde complexe).

Pour les fréquences petites devant ω_s , la relation de dispersion se situe sous la ligne de lumière $\omega = k_0 c / \sqrt{\epsilon_d}$ (en pointillé sur les Fig. 1.5(a) et (b)). Le plasmon de surface est un mode non-radiatif, c'est-à-dire qu'il ne peut pas se coupler directement à une onde plane. Son champ électromagnétique est évanescent : il décroît exponentiellement en s'écartant de l'interface. À cause des pertes dans le métal, le champ décroît aussi exponentiellement lors de sa propagation. On caractérise l'atténuation du champ parallèlement et perpendiculairement à l'interface par la longueur de propagation et le confinement.

1.3.2 Longueur de propagation et confinement

Le plasmon de surface est une onde électromagnétique polarisée TM, *i.e.* le champ magnétique \mathbf{H}_i dans le milieu i est parallèle à l'interface métal/diélectrique et s'écrit dans le repère de la Fig. 1.4 :

$$\mathbf{H}_i = H_{0i} \exp [i(k_{spp}x + k_{zi}z - \omega t)] \mathbf{u}_y. \quad (1.4)$$

1.3. Plasmons de surface sur une interface plane

Le vecteur d'onde k_{spp} dans la direction de propagation \mathbf{u}_x est un complexe s'écrivant $k_{spp} = k'_{spp} + ik''_{spp}$. Dans un métal, la constante diélectrique est à partie réelle négative et d'après l'éq. 1.2 :

$$|k_{spp}| > k_0. \quad (1.5)$$

Les composantes du vecteur d'onde k_{spp} et k_{zi} sont liées par :

$$k_{zi} = \sqrt{\epsilon_i k_0^2 - k_{spp}^2}. \quad (1.6)$$

Comme k_{spp} et k_0 sont complexes, il en est de même pour k_{zi} qui s'écrit $k_{zi} = k'_{zi} + ik''_{zi}$. Le signe de la racine carrée doit être choisi avec précaution dans chaque milieu en tenant compte de l'atténuation de l'amplitude du champ en s'écartant de la surface. On a $k''_{zi} > 0$ pour $z > 0$ et $k''_{zi} < 0$ pour $z < 0$. L'intensité du champ magnétique d'un plasmon de surface I_{sppi} dans le milieu i s'écrit donc :

$$I_{sppi}(x, z) = I_0 \exp(-2k''_{spp}x) \exp(-2k''_{zi}z). \quad (1.7)$$

L'éq. 1.7 permet de dégager deux caractéristiques d'un plasmon de surface représentées schématiquement sur la Fig. 1.6 : sa longueur de propagation Λ et son confinement perpendiculairement à l'interface δ_{zi} définis comme :

$$\Lambda = \frac{1}{2k''_{spp}} \quad (1.8)$$

$$\delta_{z1} = \frac{1}{2|k''_{z1}|} \quad \text{et} \quad \delta_{z2} = \frac{1}{2|k''_{z2}|}. \quad (1.9)$$

La **longueur de propagation** dépend du couple métal/diélectrique choisi, et augmente avec la longueur d'onde. En effet, les pertes du plasmon de surface sur une interface plane sont exclusivement non-radiatives, *i.e.* liées à l'absorption du métal qui diminue aux grandes longueurs d'ondes. Le **confinement** δ_{zi} du plasmon de surface n'est pas le même dans le métal et dans le diélectrique. Le champ électromagnétique d'un plasmon de surface pénètre davantage du côté du diélectrique. À titre d'exemple, la longueur de propagation (Λ) et le confinement (δ_{zi}) pour un plasmon de surface se propageant le long d'une interface air/or sont représentés sur la Fig. 1.7.

Ces deux caractéristiques, longueur de propagation et confinement, vont nous intéresser tout particulièrement dans la suite de ce travail. Nous montrerons en par-

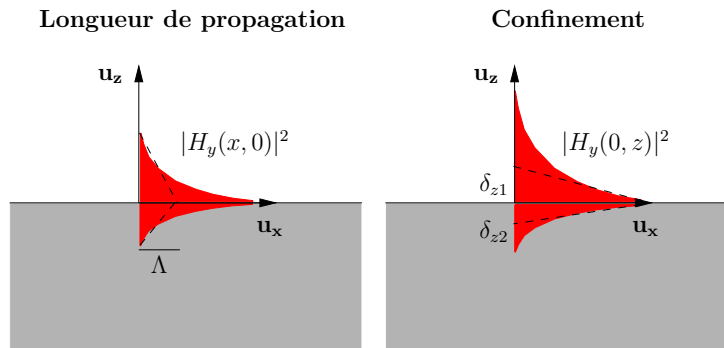


FIG. 1.6 – Représentation schématique de la longueur de propagation Λ et le confinement δ_z du plasmon de surface se propageant à l’interface entre un métal et un diélectrique.

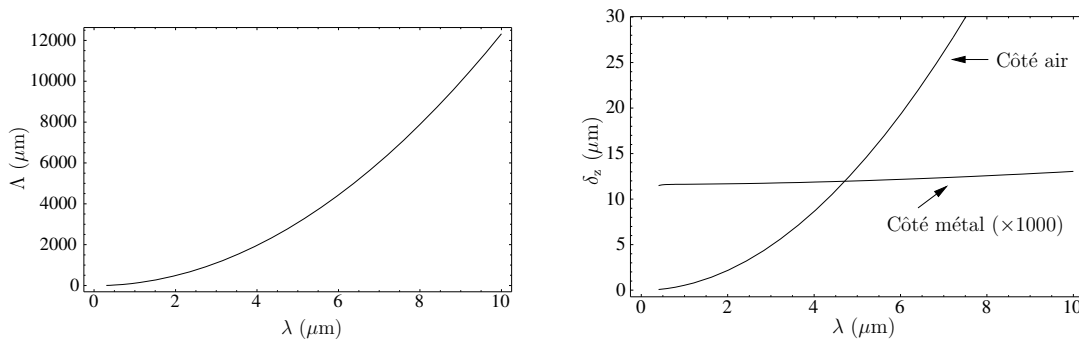


FIG. 1.7 – Longueur de propagation Λ et confinement δ_z d’un plasmon de surface le long d’une interface or/air.

ticulier comment des ouvertures nanométriques dans un film métallique permettent de les modifier (Cf. chapitre 4).

Excitation optique d’un plasmon de surface sur une interface plane

Comme le montre la Fig. 1.5, la relation de dispersion d’un plasmon de surface est située sous le cône de lumière défini par $\omega = ck_0/\sqrt{\epsilon_1}$ pour $\omega < \omega_s$. Elle ne peut donc pas croiser la relation de dispersion d’une onde plane quelque soit son angle d’incidence θ . Cela signifie que l’on ne peut pas exciter un plasmon de surface en éclairant une interface métallique par une onde plane. Bien sûr, cette propriété est propre aux ondes évanescentes. Heureusement pour l’opticien, il existe différentes solutions afin de coupler un photon et un plasmon de surface : la *réflexion totale atténuée* (ATR en anglais), par exemple dans les configurations dites “Otto” et “Kretschmann-Reather” [8], ou le couplage par *réseau de diffraction* (Cf. chapitre 2).

1.4 Guides plasmoniques : développements récents

Les guides plasmoniques permettent un confinement de la lumière en deçà de la limite de diffraction. Afin de maximiser ce confinement et la propagation des plasmons de surface le long de ces dispositifs, de nombreuses structures ont été proposées. Nous présentons ici les guides plasmoniques les plus étudiés dans la littérature et discutons de leurs principales propriétés.

Dans la suite, la notion de confinement du champ correspond à la longueur d'atténuation du plasmon de surface perpendiculairement à la direction de propagation. On parlera de confinement vertical de l'onde dans la direction normale à la surface métallique (il s'agit de δ_z au §1.3.2), et de confinement latéral de la lumière parallèlement à l'interface du métal.

Film métallique

La longueur de propagation d'un plasmon de surface sur une interface plane est trop faible pour envisager leur intégration dans les circuits optoélectroniques. En effet, le fort confinement du champ électromagnétique crée une forte absorption dans le métal. Pour diminuer les pertes dans les guides plasmoniques, il est nécessaire de déplacer la distribution du champ plutôt dans le diélectrique.

La solution la plus simple pour modifier la propagation d'un plasmon de surface est d'utiliser un film métallique pris en sandwich entre deux milieux diélectriques (Fig. 1.8). Les études de ces guides d'ondes ont mis en évidence des modes se propageant avec de très faibles pertes le long du film métallique [32,33]. Nous rappelons ici leurs propriétés. L'annexe C donne une description du calcul des modes en fonction de l'épaisseur du métal.

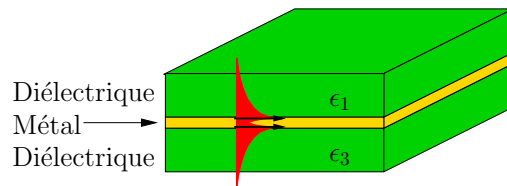


FIG. 1.8 – Film métallique : les plasmons de surface, représentés schématiquement en rouge, se propagent le long du métal entre les deux milieux diélectriques.

Si le film métallique est suffisamment épais devant l'épaisseur de peau dans le métal, les champs associés aux plasmons de surface de chaque interface ne se recouvrent pas et se propagent indépendamment l'un de l'autre. En diminuant l'épaisseur du

film, les modes supportés par chaque interface se couplent. Deux cas se présentent à nous : la structure symétrique et la structure asymétrique.

Cas d'une structure symétrique ($\epsilon_1 = \epsilon_3$) :

Dans le cas d'un film métallique mince entouré de matériaux diélectriques, de permittivités diélectriques ϵ_1 et ϵ_3 identiques, les deux modes de plasmons de surface se couplent à travers le métal pour donner lieu à deux nouveaux modes avec des fréquences et symétries du champ différentes (Fig. 1.9). Ces modes couplés présentent les mêmes symétries pour les composantes de champ magnétique H_y et électrique E_z respectivement parallèle et perpendiculaire à la surface du métal. L'un des modes est antisymétrique, *i.e.* E_z et H_y s'annulent dans l'épaisseur du métal. L'autre mode est symétrique car il résulte de l'interférence constructive des deux plasmons de surface dans le métal. Les champs E_z et H_y ne s'annulent pas dans le métal ce qui augmente les pertes par absorption.

Au contraire, le champ électrique du mode antisymétrique s'étale davantage dans le diélectrique et les pertes par absorption dans le métal diminuent. Ce mode antisymétrique est généralement nommé dans la littérature "Long-Range Surface Plasmon Polariton" (LRSPP) car sa longueur de propagation peut devenir très grande. Au contraire le mode symétrique qui s'atténue beaucoup plus vite au cours de la propagation est nommé "Short-Range Surface Plasmon Polariton".

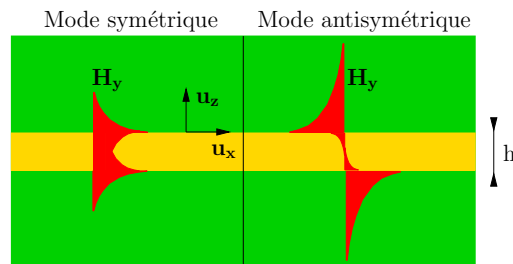


FIG. 1.9 – Allure du champ magnétique H_y pour les modes symétrique et antisymétrique du film métallique.

En diminuant l'épaisseur du métal, on augmente la longueur de propagation du mode antisymétrique alors que les pertes augmentent pour le mode symétrique. Pour des faibles épaisseurs de métal (≈ 10 nm), les distances de propagation peuvent atteindre plusieurs cm dans le visible pour le mode LRSPP, *i.e.* 1000 fois mieux que le plasmon de surface d'une interface plane.

Cependant l'augmentation des distances de propagation se fait au détriment du confinement du champ. En diminuant l'épaisseur du métal, on tend vers une onde plane propagative dans le milieu diélectrique plutôt que vers un mode guidé à proximité du métal. Un compromis est donc nécessaire entre longueur de propagation

et confinement du mode : la diminution des pertes de propagation est liée à l'augmentation de la pénétration du champ électrique dans le milieu diélectrique. Ces propriétés sont détaillées dans l'annexe [C.3.1](#).

Cas d'une structure asymétrique ($\epsilon_1 < \epsilon_3$) :

Dans ce cas, les modes se propageant sur chaque interface ont des vitesses de groupe et des atténuations différentes. Comme dans le cas symétrique, en diminuant l'épaisseur du métal, les modes de chaque interface se recouvrent et donnent lieu à deux modes couplés guidés par le film métallique : un mode non-radiatif ("bound mode") qui reste confiné le long du film métallique et un mode radiatif ("leaky mode") dont l'énergie s'échappe du film dans le milieu diélectrique de plus fort indice [33]. Le champ électrique de l'un de ces modes peut s'annuler dans l'épaisseur du métal. On parle donc de mode antisymétrique et symétrique par analogie avec les modes de la structure symétrique.

Les modes radiatifs et non-radiatifs présentent des relations de dispersion différentes en fonction de l'épaisseur du film et du choix des diélectriques. Le champ des modes non-radiatifs décroît exponentiellement en s'écartant de la surface et les pertes sont dues à l'absorption dans le métal. Les modes radiatifs correspondent à des plasmons de surface qui se propagent le long de l'interface de plus faible indice (diélectrique 1/métal), avec une décroissance du champ exponentielle à travers le film métallique et une fuite dans le milieu de fort indice (diélectrique 3). Les pertes de ce mode sont de deux natures : par absorption dans le métal et par couplage radiatif dans l'un des diélectriques. Si le film métallique n'est pas trop mince, alors le mode radiatif se propage avec moins de pertes que le mode non-radiatif, car l'absorption est plus faible et le couplage radiatif peu élevé [C.3.2](#).

Ruban métallique

Les films métalliques offrent un intérêt assez limité en pratique puisque le confinement du champ n'a lieu que dans la direction perpendiculaire à la propagation. Il faut donc limiter la largeur du film pour confiner le champ latéralement.

Considérons le cas d'un guide plasmonique composé d'un ruban métallique de largeur et d'épaisseur finie représenté schématiquement sur la Fig. [1.10](#). Le confinement 2D des plasmons de surface est assuré dans le plan transverse à la direction de propagation. Cette géométrie est très utile car en principe elle permet aussi bien de transmettre des signaux optiques sur des courtes distances, ou de faire du démultiplexage en longueur d'onde. De plus en combinant plusieurs rubans métalliques, il est possible de réaliser des composants passifs comme des coupleurs ou séparateurs d'ondes [34]. Enfin, la réalisation de composants actifs à base de rubans métalliques

entourés de polymère, comme un interféromètre de Mach-Zender ou un interrupteur optique, a déjà été démontrée [35] : grâce à l'effet joule créé par le passage d'un courant dans le métal, il est possible de contrôler thermiquement l'indice optique du polymère et le mode qui se propage le long du ruban.

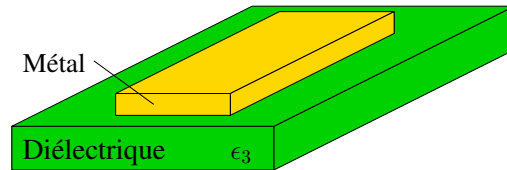


FIG. 1.10 – Ruban métallique déposé sur un substrat diélectrique. Il constitue un guide pour les modes de plasmons de surface couplés se propageant sur les interfaces du ruban.

L'étude théorique des modes fondamentaux des rubans métalliques ainsi que leurs relations de dispersion sont décrits dans les références [36,37,38]. Considérons le cas d'un ruban métallique entouré d'un même milieu diélectrique ($\epsilon_1 = \epsilon_3$). Il existe 2 plans de symétrie de la structure. Les modes de chaque interface se recouvrent dans les guides de faibles dimensions et se recombinaient symétriquement ou antisymétriquement par rapport aux 2 plans de symétrie. Il existe 4 configurations différentes de recombinaison des modes se propageant aux interfaces du ruban, avec à chaque fois un mode fondamental et une série de modes d'ordres plus élevés. L'existence de ces différents modes dépend de la géométrie de la structure : ainsi on retrouve les notions de largeur et d'épaisseur de coupure en deçà desquelles les modes n'existent plus.

Le confinement de ces modes est proportionnel à l'épaisseur du ruban et comporte un optimum en fonction de la largeur du ruban [39]. L'un des modes fondamentaux supportés par la structure présente un intérêt tout particulier car il ne présente ni fréquence ni épaisseur de coupure : comme le mode LRSPP dans les films minces, il tend vers un mode transverse électromagnétique (TEM) pour des épaisseurs et largeurs de rubans décroissantes. Par ailleurs, la symétrie de ce champ permet de l'exciter simplement en focalisant la lumière à l'entrée du ruban métallique [36]. En jouant sur les dimensions du ruban, il peut même être le seul mode se propageant sur de grandes distances. Aux longueurs d'onde des télécommunications optiques ($\lambda = 1.5 \mu\text{m}$), l'atténuation de la puissance de ce mode peut atteindre de 10 à 0.1 dB/cm [36]. Ainsi, les rubans métalliques peuvent propager efficacement la lumière avec un confinement 2D et peu de pertes dans le métal.

Les modes supportés par le guide asymétrique ($\epsilon_1 \neq \epsilon_3$) diffèrent significativement du cas précédent [40]. En particulier, l'évolution de ces modes montre un caractère oscillant inhabituel avec l'épaisseur.

Les modes plasmoniques des rubans métalliques ont été étudiés expérimentalement à l'aide de mesures en champ proche [41, 42, 43, 44, 45]. Un très fort confinement latéral peut être obtenu. A titre d'exemple, des fils nanométriques d'argent ayant un diamètre de l'ordre de 100 nm ont été fabriqués chimiquement et déposés sur un substrat en verre [46]. Les mesures optiques ont permis de démontrer que ces fils jouent le rôle de guides plasmoniques, et peuvent constituer des résonateurs de quelques microns de long pour les plasmons de surface.

Les rubans métalliques présentent encore un gros potentiel pour guider efficacement la lumière. Cependant les études théoriques de ces systèmes sont encore assez récentes et reposent sur des structures idéales (surfaces parfaitement planes et coins des rubans parfaitement perpendiculaires). Les études à venir dans ce domaine devront prendre en compte les limitations technologiques afin d'optimiser leur performances.

Ruban diélectrique sur un film métallique

Le confinement à la fois vertical et latéral d'une onde de surface peut également être obtenu avec une structure inverse à la précédente : un ruban diélectrique déposé sur un substrat métallique massif joue le rôle de guide d'onde (Cf. Fig. 1.11) [47]. La largeur et l'épaisseur du ruban diélectrique permettent en particulier de modifier la vitesse de groupe du mode [48].

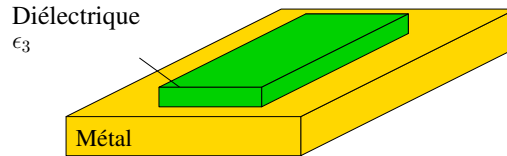


FIG. 1.11 – Ruban diélectrique d'indice ϵ_3 dans un milieu d'indice $\epsilon_1 < \epsilon_3$ déposé sur une surface métallique. Les plasmons de surface restent confinés sous le guide d'onde diélectrique.

Guide métal/diélectrique/métal

Une autre solution pour confiner très fortement les modes est de placer un diélectrique entre deux films métalliques épais (Fig. 1.12). Le mode fondamental de la structure métal-diélectrique-métal est un mode couplé constitué des deux plasmons de surface de chaque interface [49, 50]. Si les deux films métalliques sont suffisamment éloignés, l'indice effectif du guide $n_{eff} = k_x/k_0$ est très proche de l'indice effectif du plasmon de surface d'une interface métal/diélectrique unique. À mesure

que les films métalliques se rapprochent, l'indice effectif et le confinement du mode augmentent. Cependant, l'augmentation du confinement se fait au détriment de la propagation du mode. En effet, le champ électrique pénètre de plus en plus dans le métal, et donc les pertes par absorption augmentent.

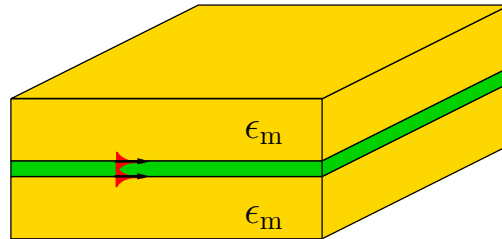


FIG. 1.12 – Couche diélectrique entre deux couches métalliques. Les plasmons de surface se propagent aux interfaces du diélectrique et des métaux avec un excellent confinement et une augmentation de l'indice effectif.

Récemment, Miyazaki et *al.* ont fabriqué des guides Au/SiO₂/Au ayant une épaisseur de diélectrique de seulement 3.3 nm [51, 52]. Un indice effectif de 13 pour une longueur d'onde de 650 nm a été démontré pour ces guides. Ces résultats démontrent le confinement extrême de la lumière qu'il est possible d'atteindre dans ces structures, et la possibilité de concevoir des résonateurs optiques de très petites dimensions.

Par ailleurs, la structure guide d'onde métal/diélectrique/métal permet également d'obtenir des indices de réfraction négatifs pour les plasmons de surface [53, 54].

Canal en forme de sillon métallique

Récemment, Bozhevolnyi et *al.* ont réalisé un guide d'onde en forme de sillon dans une couche épaisse de métal (ou channel metal grooves) [55]. Ce type de structure avait déjà été proposé théoriquement dans la littérature [56]. Une photographie et une vue simplifiée du guide sont représentées dans la Fig. 1.13. Comme dans le cas du guide métal/diélectrique/métal, le rétrécissement du guide induit une augmentation de l'indice effectif [50]. Ce guide peut être vu comme un guide à gradient d'indice, qui permet de confiner le mode fondamental au fond du sillon.

Il faut néanmoins nuancer ce résultat. Le champ électromagnétique du mode fondamental est repoussé en dehors du guide lorsque la longueur d'onde augmente [57].

Par ailleurs, un compromis doit être établi entre le confinement du mode et les pertes. En effet, au fond du sillon, le mode s'étend aussi dans le métal, ce qui augmente l'absorption. Une alternative à ce problème est alors de considérer la structure inverse (représentée dans la Fig. 1.14). Cette nouvelle structure permet

de confiner fortement le mode le long de l'arête avec moins de pertes que dans les sillons [58].

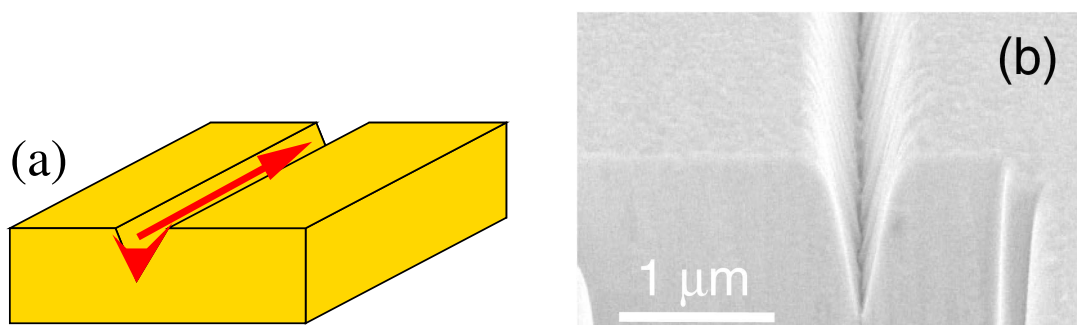


FIG. 1.13 – Un guide plasmonique en forme de sillon métallique permet de guider l'énergie du mode avec un très fort confinement de la lumière : (à gauche) vue schématique, (à droite) photographie prise au microscope électronique à balayage (référence [55])

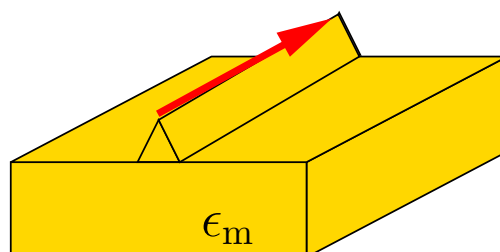


FIG. 1.14 – Structure inversée de sillon métalliques (“Wedge channel plasmon polariton”). Le plasmons de surface se propage le long de l'arête métallique.

Chaînes de nanoparticules métalliques

L'interaction forte entre les nanostructures métalliques individuelles et la lumière permet de transférer de l'énergie de proche en proche et de réaliser des guides d'ondes. En effet, la lumière permet d'exciter des plasmons de volume dans les nanostructures métalliques qui se comportent alors comme des dipôles. En plaçant de manière ordonnée les nanoparticules métalliques à quelques dizaines de nanomètres les unes des autres (Fig. 1.15), les particules métalliques ont alors un comportement collectif, et la lumière peut se propager le long du guide [59, 60]. Il s'agit d'un des rares guides plasmoniques rapportés dans la littérature ayant une structuration périodique. Néanmoins, le faible couplage entre les particules ainsi que les pertes radiatives trop importantes limitent fortement ce système pour guider efficacement la lumière.

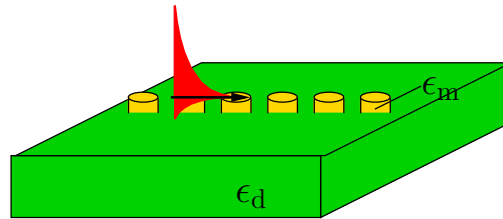


FIG. 1.15 – Chaîne de nanoparticules métalliques déposées sur un substrat diélectrique.

Composants optiques pour plasmons de surface

De nombreux composants optiques passifs ont été réalisés à partir des différents types de guides plasmoniques que nous venons de présenter. On trouve ainsi des guides plasmoniques courbes [61], miroirs à plasmons de surface [62, 63, 64], des séparateurs d’ondes (beamsplitters) [62, 65], des coupleurs [66], des résonateurs [65]... Signalons également la démonstration très récente d’un modulateur “tout optique” utilisant un guide plasmonique [67].

Tous ces composants montrent le potentiel des guides plasmoniques pour la réalisation d’applications optiques et électro-optiques. Ils sont néanmoins limités par les difficultés de couplage en entrée et en sortie des guides, et surtout par les longueurs de propagation des modes plasmoniques limitées à quelques microns dans le domaine visible.

Conway et *al.* ont récemment publié une étude comparative entre les interconnexions plasmoniques et classiques [68]. Quelque soit la solution envisagée pour relier les différents éléments d’un circuit intégré, elle devra minimiser les temps d’accès, les pertes d’énergie et les interactions entre les différentes connexions. Les auteurs sont très prudents concernant le remplacement des interconnexions électriques par des guides plasmoniques, car un compromis est nécessaire entre la densité des connexions et les pertes de ces systèmes. Néanmoins, les guides plasmoniques peuvent jouer un rôle important pour d’autres applications de circuits intégrés. En effet les guides diélectriques conventionnels sont encore loin de satisfaire aux exigences technologiques dans les régions actives des circuits intégrés. La diffraction de la lumière empêche une miniaturisation en deçà la longueur d’onde. Les guides plasmoniques pourraient ainsi faire le lien entre la technologie optique et électronique.

1.5 Bilan et objectif de la thèse

L'état de l'art sur les guides plasmoniques a permis de dresser un bilan des capacités de propagation et de confinement de la lumière. Un compromis entre miniaturisation et pertes est nécessaire pour optimiser les performances de ces dispositifs. L'amélioration des techniques de fabrication (meilleur contrôle des paramètres géométriques des guides, structures encore plus uniformes, diminution de la rugosité) devrait permettre d'améliorer les performances des guides et de les intégrer dans les futurs dispositifs optoélectroniques.

Cependant, deux points très importants n'ont pas été suffisamment développés à nos yeux. Le premier concerne la **sélectivité spectrale**. La plupart des guides plasmoniques décrits dans la littérature présentent des performances qui changent très peu avec la fréquence (ou bien de manière monotone). Il serait intéressant, notamment pour la conception de sources de lumière (lasers à cascades quantiques,...) de développer des structures capables de jouer le rôle de filtre spectral.

Un deuxième point concerne le couplage des guides aux autres composants de son environnement. En effet, de nombreuses structures présentent des performances très intéressantes en terme de propagation, pertes ou confinement mais sont très mal couplées avec l'extérieur. Contrôler le **couplage radiatif** des guides plasmoniques permet d'améliorer l'interfaçage avec d'autres composants, et d'ouvrir de nouvelles perspectives pour la conception de lasers à cascades quantiques à émission par la surface.

Pour répondre à ces besoins il est important d'apporter une solution nouvelle au contrôle de la sélectivité spectrale et du couplage radiatif dans les guides plasmoniques. L'approche choisie dans cette thèse est un guide plasmonique nanostructuré, qui consiste en un film métallique mince percé périodiquement par des fentes nanométriques (schématiquement représenté sur la Fig. 1.16(a)). La propagation des plasmons de surface est perpendiculaire à la structuration du guide, alors que dans les guides plasmoniques déjà proposés dans la littérature, la propagation se fait le long de la structuration du métal. De plus, nous avons étudié la propagation de plasmons de surface le long d'un film métallique structuré dans les deux directions du plan (Fig. 1.16(b)). La variation périodique de l'indice optique dans le film métallique rappelle alors celle des cristaux photoniques. Dans chaque cas, la structuration de film permet de façonner les relations de dispersion des modes. C'est pourquoi par analogie avec les cristaux photoniques, nous désignerons de **cristaux plasmoniques 1D ou 2D** les structures de la Fig. 1.16.

Les propriétés générales et la fabrication des cristaux plasmoniques sont détaillées dans le chapitre 2. Ces structures sont étudiées par des mesures en champ lointain

résolues angulairement et spectralement. La technique de mesure développée sera décrite dans le chapitre 3.

Dans le chapitre 4, l'étude expérimentale et numérique des guides plasmoniques nanostructurés 1D révèlent une modification des propriétés d'émission et de propagation des ondes de surface. L'existence de plusieurs modes de plasmons de surface se propageant sur différentes interfaces et interagissant les uns avec les autres est à l'origine de différents régimes de propagation. Le guide plasmonique nanostructuré 1D laisse entrevoir des perspectives prometteuses pour le contrôle des plasmons de surface.

Les mécanismes d'excitation et de couplage entre plasmons de surface sur les interfaces d'un cristal plasmonique 2D sont présentés dans le chapitre 5. L'étude expérimentale et numérique mettra ainsi en évidence l'interaction de plusieurs plasmons de surface se propageant sur une même interface dans des directions de propagations différentes.

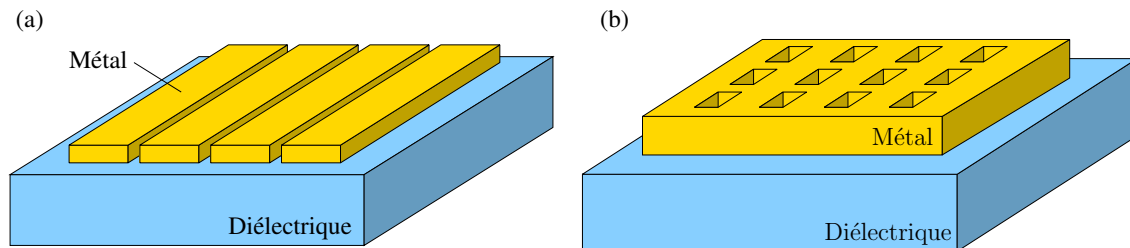


FIG. 1.16 – Vue schématique de films métalliques nanostructurés : (a) film métallique percé avec des fentes périodiques 1D, (b) film métallique percé de trous carrés périodiques 2D.

Dans le cadre de cette thèse, les objectifs principaux sont :

- Développer un procédé de fabrication des cristaux plasmoniques avec un bon contrôle des paramètres géométriques de la structure sur des surfaces suffisamment grandes ($2 \times 2 \text{ mm}^2$) et homogènes pour leurs caractérisations.
- Développer un banc de caractérisation pour l'étude des propriétés dispersives d'un cristal plasmonique 1D ou 2D. Un effort important a été apporté sur les résolutions spectrale et angulaire grâce à un spectromètre à transformée de Fourier et une optique de focalisation.
- Mettre en évidence la possibilité de contrôler l'émission de lumière et la propagation des plasmons de surface dans les guides plasmoniques nanostructurés.
- Étudier les propriétés générales des cristaux plasmoniques 1D et 2D et montrer comment la structuration des films métalliques permet de contrôler les relations de dispersion et le couplage entre plasmons de surface.

Chapitre 2

Cristaux plasmoniques : propriétés générales et fabrication

L'étude menée au cours de cette thèse porte sur les propriétés des plasmons de surface se propageant le long d'une interface métallique structurée. On s'intéresse plus particulièrement à l'influence de la structuration périodique sur les relations de dispersion des cristaux plasmoniques 1D.

Le chapitre précédent a permis de dresser un bilan des propriétés des plasmons de surface le long d'une interface plane entre deux milieux semi-infinis (métal/diélectrique), ainsi que pour plusieurs guides plasmoniques permettant un meilleur confinement latéral du mode. Dans ce chapitre nous décrivons les propriétés générales des plasmons de surface dans deux cas :

- un métal semi-infini percé périodiquement de fentes
- un film métallique fin percé de fentes et déposé sur un substrat.

Nous présenterons tout d'abord les travaux expérimentaux de Wood qui fut le premier à observer, sans pouvoir les interpréter, un phénomène qui résulte en fait des relations de dispersion des plasmons de surface dans les réseaux métalliques. On décrira alors les diagrammes de dispersion des plasmons de surface dans les réseaux métalliques 1D de faible épaisseur (§ 2.1). La recherche des modes et la modélisation électromagnétique des réseaux métalliques 1D seront ensuite présentées (§ 2.2). Enfin, les développements des procédés de fabrication des cristaux plasmoniques étudiés au cours de cette thèse seront donnés à la fin du chapitre (§ 2.3).

2.1 Plasmons de surface sur une interface nanostructurée périodiquement

Depuis plus d'un siècle, les propriétés des réseaux métalliques ont suscité un grand nombre d'études théoriques et expérimentales. Les différentes études ont permis de mettre en évidence l'existence de plasmons de surface le long des réseaux métalliques. Dans cette section, nous discuterons tout d'abord des anomalies de Wood, puis des relations de dispersion des plasmons de surface sur les surfaces métalliques nanostructurées.

2.1.1 Anomalies de Wood

C'est en étudiant la diffraction d'une source de lumière polychromatique par des réseaux métalliques que Wood a mis en évidence pour la première fois des anomalies dans les spectres mesurés [69]. Il observa de brusques changements d'intensité pour des petites variations de la longueur d'onde de la lumière. Ces anomalies se manifestaient par des bandes sombres et claires dans les spectres de diffraction (Fig. 2.1). Wood fut le premier à signaler que ces anomalies se manifestaient uniquement lorsque le champ magnétique incident était parallèle à l'interface (polarisation TM). Il nota de plus que ces anomalies se décalaient spectralement avec l'angle d'incidence de la lumière.

En 1907, Rayleigh expliqua la position des anomalies en polarisation TM. Il suggéra que les anomalies de Wood sont dues à l'apparition ou à la disparition d'un ordre diffracté par le réseau aux longueurs d'onde de Rayleigh λ_R [70] lorsque :

$$nk_0 = \left| k_0 \sin \theta + p \frac{2\pi}{d} \right| \quad (2.1)$$

$$\Leftrightarrow \frac{n}{\lambda_R} = \left| \frac{n}{\lambda_R} \sin \theta + \frac{p}{d} \right| \quad (2.2)$$

où p est l'ordre de diffraction d'un réseau de période d et n est l'indice de réfraction du milieu incident. Malheureusement, c'était insuffisant pour décrire l'ensemble des résultats obtenues par Wood en 1902 et par la suite [71, 72], notamment la forme des spectres de réflexion (minima et maxima).

En 1941, Fano montra que ces phénomènes mettent en jeu des ondes de surface [73]. Plus tard en 1965, Hessel et Oliner modélisent les anomalies de Wood et distinguent deux causes [74] : les phénomènes liés à l'apparition/disparition d'un ordre diffracté et des effets de résonances. Ces derniers sont liés à un couplage avec des modes propres associés au réseau dont les plasmons de surface. Ils montrèrent

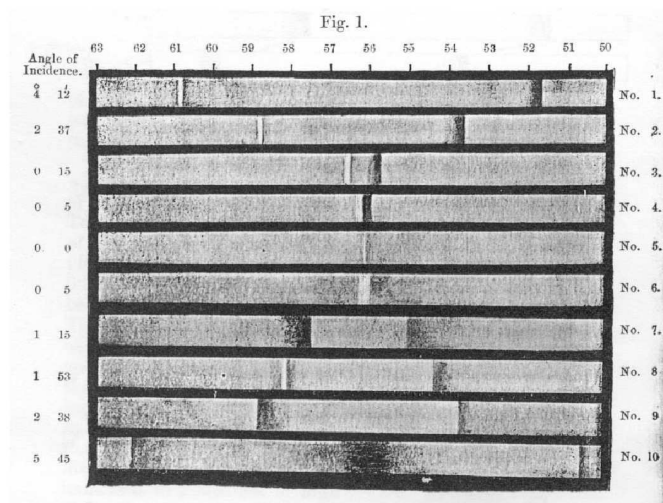


FIG. 2.1 – Premiers spectres de réflexion de la lumière obtenus sur des réseaux métalliques pour différents angles d’incidence, publiés par Wood en 1902 [69]. On constate de brusques variations de la réflexion lorsque l’on change la longueur d’onde (bandes sombres et claires). On remarque par ailleurs le décalage spectral des creux de réflexion avec l’angle d’incidence de la lumière.

que ces deux types d’anomalies peuvent se manifester séparément et indépendamment l’une de l’autre et à des longueurs d’ondes voisines des longueurs d’ondes de Rayleigh.

À partir des années 70, le développement de l’informatique facilita les calculs électromagnétiques et les explications de ces “anomalies”. En particulier, Nevière et Maystre [75] étudièrent les anomalies de Wood en calculant les pôles et zéros des coefficients de réflexion et de transmission. Ils confirmèrent théoriquement l’existence des anomalies ainsi que leurs origines.

En étudiant la réflexion de la lumière pour différentes incidences (Fig. 2.1), Wood présenta la première détermination expérimentale des relations de dispersion des plasmons de surface. Aujourd’hui, les spectres observés par Wood peuvent être reproduits expérimentalement et numériquement avec une résolution spectrale et angulaire bien meilleure. C’est la démarche que nous suivrons pour l’étude des cristaux plasmoniques 1D et 2D présentée aux chapitres 4 et 5. Les mesures optiques résolues angulairement et spectralement auront comme objectif de révéler précisément les relations de dispersion des plasmons de surface se propageant à l’interface d’un film métallique nanostructuré, et ainsi mettre en évidence des interactions fines entre plasmons de surface.

Les relations de dispersion observées par Wood (Fig. 2.1) montrent un caractère plus complexe que celles présentées sur la Fig. 1.5 du chapitre 1. Dans la suite l’impact de la structuration périodique sur la relation de dispersion des plasmons

de surface est décrit d'un point de vue simplifié, avant une étude plus précise aux chapitres 4 et 5.

2.1.2 Relation de dispersion des réseaux métalliques

Contrairement au cas de l'interface plane, il est possible d'exciter des plasmons de surface le long d'un réseau métallique au moyen d'une onde plane d'incidence θ dès lors que :

$$k_{spp} \approx k_x^{(p)}. \quad (2.3)$$

où $k_x^{(p)}$ est la composante du vecteur d'onde parallèle à l'interface de l'onde diffractée d'ordre p , qui pour un réseau de période d éclairé par une onde plane d'incidence θ s'écrit :

$$k_x^{(p)} = k_0 \sin \theta + p \frac{2\pi}{d} \quad (p = 0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad (2.4)$$

La Fig. 2.2 symbolise le cas d'un plasmon de surface excité par l'ordre $p = +1$. La condition de l'éq. 2.3 est une approche perturbative : c'est une approximation satisfaisante dès lors que la relation de dispersion du plasmon de surface est suffisamment proche de la droite de lumière et que la surface des réseaux ne présentent pas une structuration trop importante (en particulier on ne considère pas de résonance verticale dans les fentes du réseau).

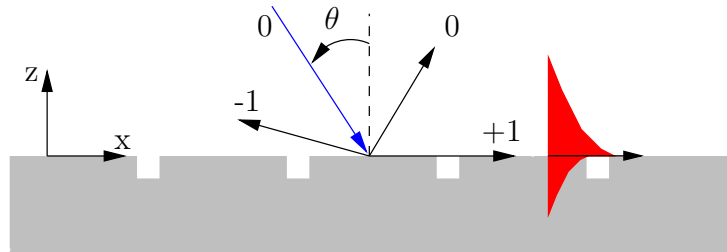


FIG. 2.2 – Réseau métallique éclairé par une onde plane d'incidence θ : la lumière est diffractée dans plusieurs directions dans le milieu incident et le long de l'interface. Le réseau de diffraction permet de coupler la lumière incidente avec le plasmon de surface (symbolisé en rouge) si l'éq. 2.3 est vérifiée.

Nous ne considérerons que des réseaux métalliques possédant un plan de symétrie parallèle à $(\mathbf{u}_y, \mathbf{u}_z)$. La relation de dispersion est donc symétrique par rapport à l'axe $k_x = 0$. De plus, la périodicité de la structure dans l'espace réel entraîne celle de la

relation de dispersion dans l'espace réciproque. Cela se traduit graphiquement par une translation de la courbe de dispersion de multiples de $K = \frac{2\pi}{d}$. Dans le cas de réseaux métalliques, la relation de dispersion est représentée schématiquement sur la Fig. 2.3. On peut finalement restreindre l'étude de la relation de dispersion entre $k_x = 0$ et $k_x = \pi/d$. Dans l'espace réciproque, la zone entre $k_x = -\pi/d$ et $k_x = \pi/d$ est appelée première zone de Brillouin.

On a représenté en jaune sur la Fig. 2.3 le cône de lumière, *i.e.* l'ensemble des fréquences et des vecteurs d'onde des ondes planes se propageant dans le diélectrique. Étant donné que les courbes de dispersion traversent le cône de lumière, il est possible d'exciter les plasmons de surface par une onde plane dans les réseaux métalliques. Remarquons également qu'autour de l'incidence normale ($k_x = 0$), le croisement des relations de dispersion est similaire aux mesures de Wood représentées sur la Fig. 2.1.

Le croisement des courbes de dispersion induit également des modes couplés et l'ouverture de "gaps" au centre et au bord de la zone de Brillouin qui ne sont pas représentés ici par souci de simplicité.

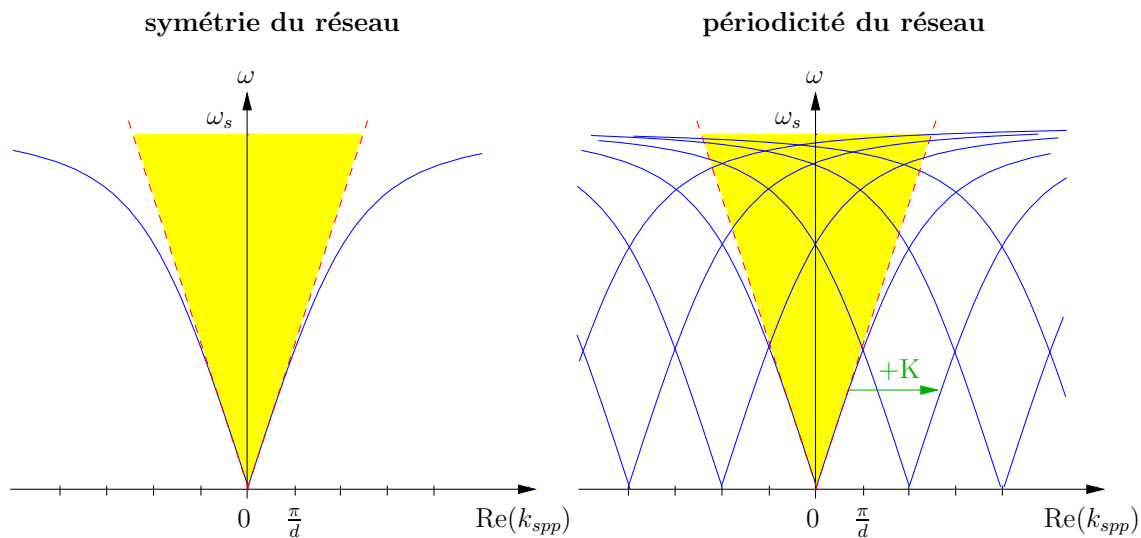


FIG. 2.3 – Courbes de dispersion des plasmons de surface dans le cas d'un réseau métallique de période d . L'influence de la symétrie et de la périodicité du réseau sur les courbes de dispersion est illustrée respectivement à gauche et à droite sur la figure. La structuration périodique du métal permet de se coupler aux plasmons de surface avec une onde plane éclairant le réseau (zone en jaune).

2.1.3 Dispersion des plasmons de surface d'un réseau métallique 1D

Considérons désormais le cas d'un réseau métallique d'épaisseur finie. Des modes de plasmons de surface peuvent être excités sur chaque interface du réseau métallique. Nous supposons que la structure est asymétrique, *i.e.* les milieux diélectriques situés de part et d'autre du réseau sont différents, par exemple de l'air et un substrat diélectrique d'indice optique élevé ($n = 3.5$).

Les courbes de dispersion d'une interface métallique percée périodiquement par des fentes sont tracées à nouveau sur la Fig. 2.4(a) dans le cas de faibles fréquences ($\omega \ll \omega_s$). Dans le cas d'un réseau métallique 1D suffisamment épais, il existe des plasmons de surface sur chaque interface du métal. Il peut également exister des résonances de cavités dans les fentes du réseaux [76, 77], nous les négligeons dans cette description schématique. Par un raisonnement analogue à celui du paragraphe § 2.1.2, on retrouve deux séries de relations de dispersion associées aux plasmons de surface se propageant le long de chaque interface (Fig. 2.4(b)). Les pentes des relations de dispersion augmentent avec la vitesse de groupe $v_g = \frac{\delta\omega}{\delta k_x}$ du plasmon de surface. Ainsi sur la Fig. 2.4(b) les relations de dispersion en bleu (resp. rouge) correspondent à un plasmon de surface se propageant du côté où l'indice optique du diélectrique est le plus faible (resp. le plus fort).

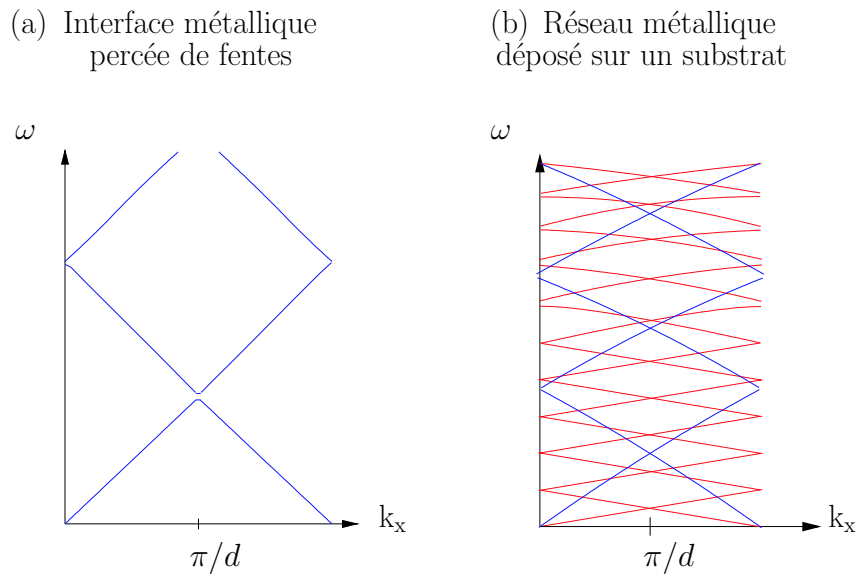


FIG. 2.4 – Représentation des relations de dispersion de plasmons de surface excités le long d'une interface métallique nanostructurée (a) ou aux interfaces d'un réseau métallique déposé sur un substrat (b).

En diminuant l'épaisseur du métal, les plasmons de surface excités aux différentes interfaces du réseau métallique peuvent alors interagir et se coupler. Cela se produit au croisement des relations de dispersion des plasmons de surface se propageant de part et d'autre du réseau. Nous verrons au chapitre 4 comment l'étude des relations de dispersion des modes d'un cristal plasmonique permet d'étudier ces interactions.

Les relations de dispersion des plasmons de surface dans les réseaux métalliques ont été schématiquement décrits en négligeant l'impact de la structuration du film métallique (forme et taille). Contrairement au cas de l'interface plane, il n'existe pas d'expression analytique pour les relations de dispersion des modes. On s'affranchit de ce problème en modélisant la réponse électromagnétique des réseaux métalliques et l'ensemble des ondes pouvant s'y propager.

2.2 Modélisation électromagnétique

Notre calcul du champ électromagnétique et des modes des réseaux métalliques est basé sur la méthode modale. Le principe de la méthode est succinctement présenté dans cette section pour la polarisation TM. Mais pour plus de précisions, le lecteur pourra se référer aux travaux de Sheng *et al.* [78] et de Collin *et al.* [77]. En complément, il faut également citer les travaux de Botten *et al.* [79] qui ont démontré que la base modale utilisée pour décrire les champs électromagnétiques dans les réseaux est une base complète.

Le calcul des modes électromagnétiques est décrit pour la structure complète (réseau métallique entouré de deux milieux diélectriques homogènes) et pour une interface structurée (voir plus loin).

2.2.1 Méthode modale

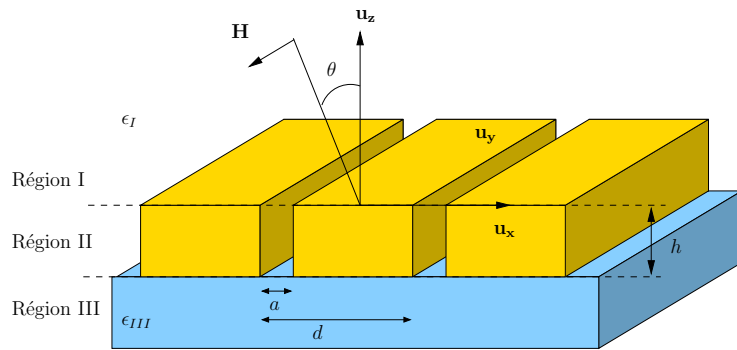


FIG. 2.5 – Schéma du réseau métallique étudié.

On étudie la réponse électromagnétique d'un réseau métallique de période d , de largeur de fente a et de hauteur h , représenté sur la Fig. 2.5. On considère ici une onde plane incidente polarisée TM faisant un angle θ avec la normale (\mathbf{u}_z). Dans le repère de la Fig. 2.5, l'amplitude complexe du champ magnétique s'écrit :

$$\mathbf{H} = H_y(x, z) \exp(-i\omega t) \mathbf{u}_y \quad (2.5)$$

L'expression de l'amplitude $H_y(x, z)$ diffère selon la région considérée. Dans les régions I et III, la décomposition de Rayleigh est utilisée pour décrire l'amplitude des

champs :

$$H_y^I(x, z) = \exp[ik_0(\sin \theta x - \cos \theta z)] + \sum_{n=-\infty}^{n=\infty} R_n \exp[i(k_x^{(n)}x + k_{zI}^{(n)}z)] \quad (2.6)$$

$$H_y^{III}(x, z) = \sum_{n=-\infty}^{n=\infty} T_n \exp[i(k_x^{(n)}x - k_{zIII}^{(n)}(z + h))] \quad (2.7)$$

où R_n et T_n sont les amplitudes complexes des ondes réfléchies dans le milieu I et transmises dans le milieu III et

$$k_x^{(n)} = k_0 \left(\sin \theta + \frac{n\lambda}{d} \right) \quad (2.8)$$

$$k_{zI}^{(n)} = \left[\epsilon_I k_0^2 - (k_x^{(n)})^2 \right]^{1/2} \quad (2.9)$$

$$k_{zIII}^{(n)} = \left[\epsilon_{III} k_0^2 - (k_x^{(n)})^2 \right]^{1/2} \quad (2.10)$$

Dans la région II, les champs sont décrits selon les modes propres du système périodique formé de couches de métal et de diélectrique supposées infinies selon la direction \mathbf{u}_z :

$$H_y^{II}(x, z) = \sum_l X_l(x) \left[A_l \exp(-ik_{zII}^{(l)}z) + B_l \exp(ik_{zII}^{(l)}(z + h)) \right] \quad (2.11)$$

où les vecteurs $k_{zII}^{(l)}$ sont solutions de l'équation des modes dans la zone II :

$$\begin{aligned} \cos(k_0 d \sin \theta) - \cos(\beta r d) \cos[\alpha(1-r)d] \\ + \frac{1}{2} \left[\frac{\epsilon_m \alpha}{\epsilon_d \beta} + \frac{\epsilon_d \beta}{\epsilon_m \alpha} \right] \sin(\beta r d) \sin[\alpha(1-r)d] = 0 \end{aligned} \quad (2.12)$$

avec $\alpha = (\epsilon_d k_0^2 - k_{zII}^2)^{1/2}$, $\beta = (\epsilon_m k_0^2 - k_{zII}^2)^{1/2}$ et $r = (d-a)/d$ le taux de métallisation dans la zone II.

Les expressions des champs dans chaque zone sont reliées grâce à la continuité des composantes tangentielles des champs magnétique H_y et électrique E_x sur les deux interfaces (I/II) et (II/III). Le champ électrique E_x découle des équations de Maxwell : $E_x = \frac{1}{i\omega\epsilon} \frac{\partial H_y}{\partial z}$. Les équations obtenues sont alors multipliées par $\exp(ik_x^{(n)}x)$ et intégrées sur une période d du réseau. On obtient ainsi un ensemble d'équations qui peuvent se mettre sous forme matricielle et qui relient les champs des zones I, II et III.

On peut ainsi relier les ondes entrantes et les ondes sortantes à l'aide d'une matrice S qui définit entièrement les propriétés électromagnétiques du système. À

titre d'exemple, il est possible de calculer la réflexion et la transmission d'une onde incidente par le réseau métallique. C'est ce que nous ferons au chapitre 4. Nous allons voir que nous pouvons également déterminer les relations de dispersion des modes électromagnétiques des réseaux métalliques.

2.2.2 Formalisme de la matrice S

Le formalisme de la matrice S permet de relier les champs sortants O d'un système en fonction des champs entrants I sous forme matricielle : $O = S \times I$. Il permet naturellement de calculer la réflexion et la transmission de la lumière par le système, mais également de rechercher les modes existants. Les modes de la structure sont définis par l'existence d'ondes sortantes du système en l'absence d'excitation, ce qui se traduit par la relation $S^{-1} \times O = 0$. Pour rechercher les modes de la structure, il faut rechercher la fréquence ω et le vecteur d'onde k_x qui permettent d'annuler le déterminant de la matrice S^{-1} , ou de manière équivalente rechercher les valeurs ω et k_x telle que la matrice S^{-1} ait une valeur propre nulle.

Nous allons exprimer les éléments de la matrice S dans deux cas : la structure toute entière de la Fig. 2.5 puis un réseau semi-infini percé périodiquement de fentes représenté sur la Fig. 2.7. Cette distinction est introduite pour pouvoir étudier séparément les modes de plasmons de surface pouvant se propager sur les deux interfaces du réseau métallique de la Fig. 2.5, afin d'étudier leurs interactions au chapitre 4.

Modes du réseau métallique

En reliant les champs sortant du réseaux (ondes réfléchies et transmises) à l'onde incidente I , on obtient une relation matricielle de la forme $O = S \times I$ où la matrice S est de la forme :

$$S = \begin{pmatrix} r_{13} & t_{31} \\ t_{13} & t_{13} \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

où les termes r_{ij} et t_{ij} sont des matrices, coefficients de réflexion et de transmission décrits sur la Fig. 2.6. Les modes propres de la structure sont obtenus en recherchant les valeurs propres non-nulles de la matrice S^{-1} . Pour un vecteur d'onde k_x (réel) donné, les solutions obtenues sont alors des fréquences complexes $\omega = \omega' + i\omega''$: la partie réelle ω' donne la longueur d'onde d'excitation de la résonance, tandis que la partie imaginaire ω'' est liée au temps de vie de la résonance τ par $\omega'' = -1/(2\tau)$.

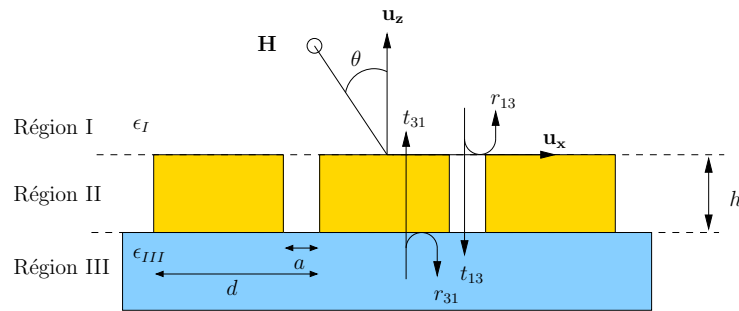


FIG. 2.6 – Réflexion et transmission d'un réseau métallique éclairé par une onde plane polarisée TM en incidence θ .

Modes de l'interface du réseau métallique

De la même manière on peut rechercher les modes d'une interface du réseau métallique. Considérons le cas de l'interface (I/II) représentée sur la Fig. 2.7. On définit comme précédemment les ondes entrantes et sortantes, qui sont reliées par la matrice S :

$$S = \begin{pmatrix} r_{12} & t_{21} \\ t_{12} & r_{21} \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

Comme dans le cas de la structure complète, la recherche des modes s'opère en déterminant les valeurs propres non-nulles de la matrice S^{-1} .

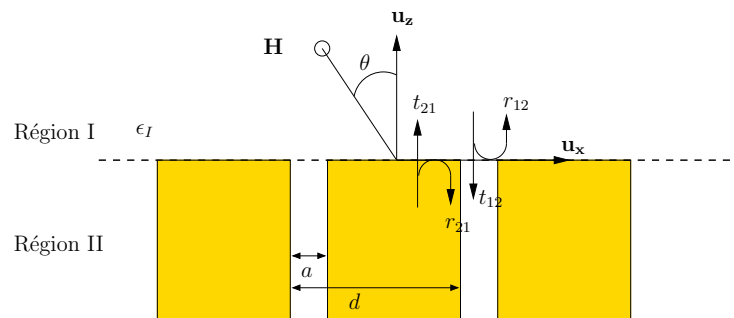


FIG. 2.7 – Réflexion et transmission d'une interface d'un réseau métallique éclairée par une onde plane polarisée TM en incidence θ .

Convention dans le calcul des modes

À la fin du paragraphe 1.3.1, nous avons discuté de la possibilité de rechercher les modes de plasmons de surface en imposant soit une fréquence réelle ou soit un vecteur d'onde k_x réel. Dans la suite une seule convention est choisie : le calcul en fréquence complexe avec un vecteur d'onde k_x réel. Ce choix s'est fait en accord avec les conditions d'excitation dans le banc de caractérisation optique des cristaux plasmoniques décrit au chapitre 3. Les réseaux sont éclairés par une onde plane et on mesure la réflexion ou la transmission de la lumière dans une direction particulière. Le vecteur d'onde incident est réel et par continuité il en est de même pour tous les autres vecteurs d'onde parallèles aux interfaces du réseau.

Le calcul des modes de plasmon de surface est à vecteur d'onde k_x réel et sa fréquence ω est complexe. Dans un spectre de réflexion et de transmission, les résonances apparaissent à la fréquence $Re(\omega)$ avec une largeur non nulle $1/(2Im(\omega))$ liée au temps de vie de la résonance. On procède de même pour la recherche de modes d'interface dans les réseaux métalliques.

2.3 Procédés de fabrication des échantillons

L'objectif est de réaliser la structure de la Fig. 2.8, en s'inspirant des procédés de fabrication de réseaux métalliques développés au cours de la thèse de Stéphane Collin [80]. Afin de satisfaire aux contraintes imposées par le banc de caractérisation optique des échantillons, certains points ont dû être améliorés. Nous allons donc détailler les contraintes de fabrication puis décrire le procédé de fabrication des échantillons développé dans la salle blanche de notre laboratoire. Par ailleurs, les développements technologiques réalisés au cours de cette thèse ont également permis la fabrication de cristaux plasmoniques 2D présentés à la fin de cette section.

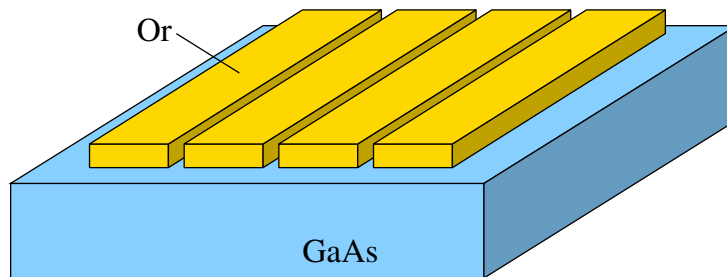


FIG. 2.8 – Schéma de la structure à fabriquer : le réseau de diffraction en or est déposé sur un substrat de GaAs.

2.3.1 Contraintes de fabrication

La réalisation des cristaux plasmoniques nécessite l'utilisation de techniques pointues afin de se rapprocher de la structure idéale de la modélisation électromagnétique (Fig. 2.8). Cela demande une maîtrise des paramètres géométriques des réseaux (période, largeur des fentes, hauteur du métal) et des états de surface. Par ailleurs certains matériaux classiquement employés en nanofabrication sont connus pour leur influence néfaste sur les performances des cristaux plasmoniques et ont donc demandé un développement technologique pour les éliminer. Ces différents points sont exposés ici.

Il est nécessaire de réaliser des réseaux métalliques de **grandes dimensions** pour les caractérisations optiques. Par grandes dimensions, nous entendons des structures de $2 \times 2 \text{ mm}^2$. En effet, les modélisations électromagnétiques des réseaux métalliques supposent que la structure est infinie ce qui est évidemment impossible en pratique. Une solution consiste à réaliser des échantillons plus grands que la longueur de propagation des plasmons de surface, ce qui est largement le cas pour ces structures. Par ailleurs, on libère une contrainte pour le développement du banc de caractérisation car il n'est pas nécessaire de focaliser trop fortement la lumière

sur le réseau. Nous montrerons au chapitre 3 que cela permet d’obtenir une très bonne résolution angulaire (jusqu’à $\pm 0.3^\circ$). La réalisation de structures de grandes dimensions impose cependant un excellent contrôle de la fabrication du point de vue de l’**homogénéité** de l’échantillon (largeur des fentes et période du réseau). Le procédé de fabrication doit être également très **reproductible**, et permettre d’obtenir une très **faible rugosité** du film métallique. De plus, des études antérieures ont montré que les **couches d’accroche** utilisées pour l’or sur les semiconducteurs (comme le titane ou le chrome) changent les propriétés des modes se propageant à cette interface (augmentation des pertes) [81]. Nous avons cherché à éliminer l’utilisation d’une telle couche. Enfin, nous souhaitons pouvoir réaliser des structures d’épaisseurs **variables, éventuellement grandes (de 40 nm à 500 nm)**, avec le même procédé.

2.3.2 Description des différentes étapes de fabrication

La fabrication des réseaux métalliques nanostructurés repose sur une technique de “double lift-off”. Les différentes étapes de fabrication sont détaillées ci-dessous et représentées sur la Fig. 2.9 :

- 1- Dépôt diélectrique de la couche de Si_3N_4 sur un substrat de GaAs (Fig. 2.9(a)) : le dépôt de nitrure est obtenu par P.E.C.V.D. (Plasma-enhanced chemical vapor deposition). L’épaisseur déposée classiquement est de 400 nm.
Lithographie électronique et lift-off du masque (Fig. 2.9(a)) : l’échantillon est enrésiné avec du PMMA (300 nm d’épaisseur), puis insolé au masqueur électronique. Le faisceau d’électrons définit la largeur des fentes du réseau métallique. Ensuite l’échantillon insolé est plongé dans un développeur pour retirer les zones irradiées de la résine. Des couches de titane (10 nm) et d’or (90 nm) sont déposées par évaporation sur l’échantillon. La résine est ensuite dissoute dans le trichloroéthylène pour procéder au lift-off. Il ne reste que des rubans métalliques sur la couche de nitrure qui serviront de masque de gravure.
- 2- Gravure ionique réactive de la couche de Si_3N_4 (isotrope) (Fig. 2.9(b)) : la gravure isotrope permet de dégager partiellement le nitrure sous le masque de Ti/Au, afin de faciliter le départ du nitrure en fin de fabrication.
- 3- Gravure ionique réactive de la couche de Si_3N_4 (anisotrope) (Fig. 2.9(c)) : le restant de la couche de Si_3N_4 est gravé avec des flancs bien verticaux. Le motif du masque de gravure est donc transféré dans la couche.
- 4- Traitement de surface du substrat de GaAs à l’acide chlorhydrique (HCl) (Fig. 2.9(d)) pour éliminer les redépôts de gravure et améliorer l’accroche de la couche d’or.

- 5- Dépôt métallique (Fig. 2.9(e)) : l'or du réseau métallique est déposé par évaporation, en prenant soin de le faire avec une incidence la plus normale possible (et ainsi éviter un dépôt de métal sur les flancs de nitrure).
- 6- Lift-off des piliers de Si_3N_4 et du masque de gravure à l'acide fluorhydrique (HF) (Fig. 2.9(f)).

2.3. Procédés de fabrication des échantillons

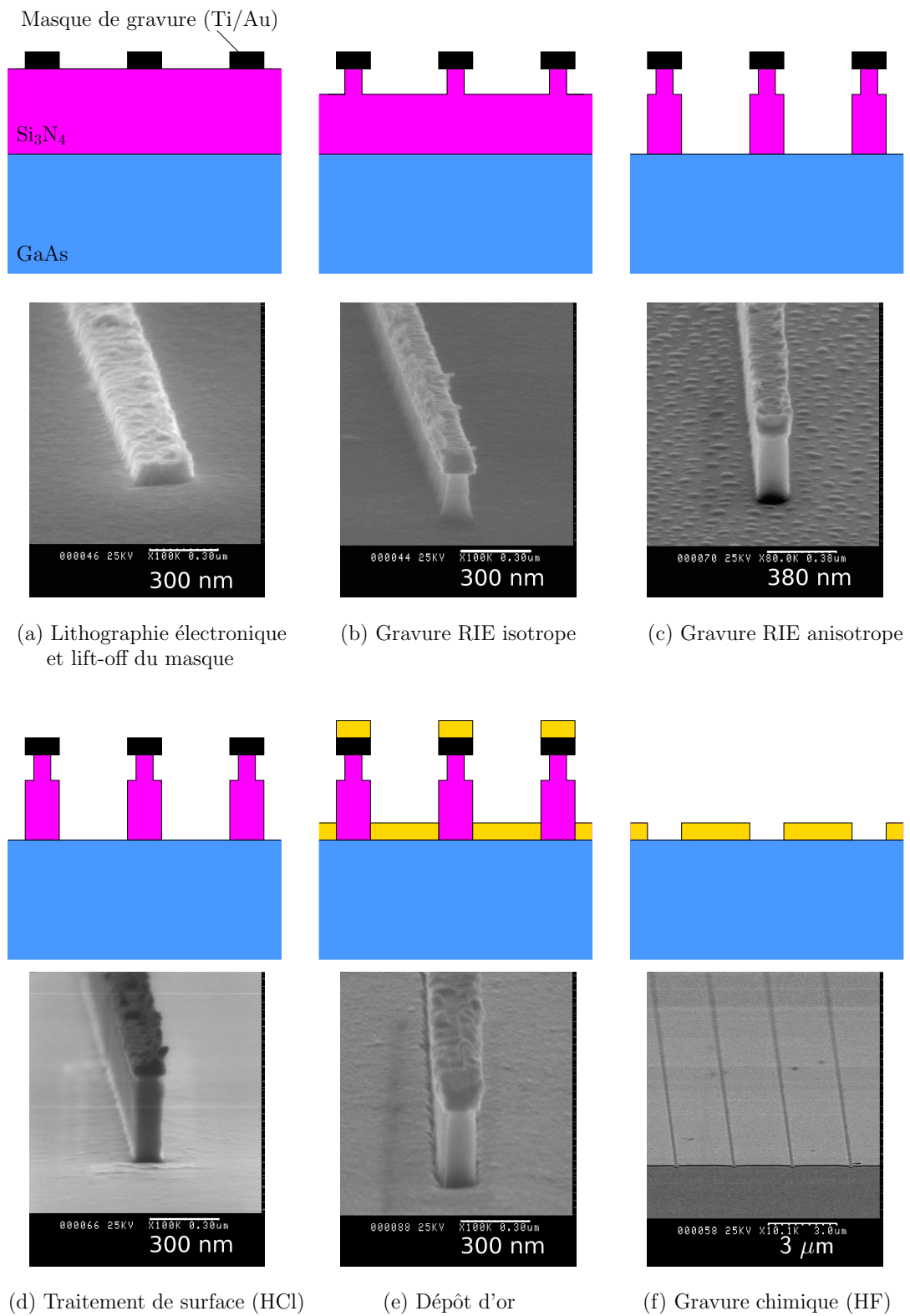


FIG. 2.9 – Procédé de fabrication des réseaux métalliques (vues schématiques et photographies prises au microscope électronique à balayage).

2.3.3 Justification du procédé de fabrication

Choix du substrat en GaAs

Les développements technologiques présentés ici ont été réalisés sur un substrat en GaAs. Ce choix se justifie principalement par le savoir-faire développé sur ce matériau au laboratoire et au sein de notre équipe. Ainsi avec ce substrat, on s'assure d'une meilleure maîtrise des insulations électroniques, des gravures et des dépôts métalliques sur GaAs lors de la réalisation de nos échantillons.

Par ailleurs comme beaucoup de semiconducteurs, le GaAs est transparent dans l'infrarouge. Comme l'étude optique des guides plasmoniques nanostructurés est prévue typiquement entre $1\ \mu\text{m}$ et $10\ \mu\text{m}$, la choix d'un substrat en GaAs ne pose pas de problème d'absorption dans les mesures.

Enfin l'une des applications visées pour les guides plasmoniques nanostructurés est de les intégrer dans des lasers à cascades quantiques, qui sont réalisés majoritairement à base de semiconducteurs III-V (substrats GaAs et InP notamment).

Lithographie électronique

La lithographie électronique est une technique courante (voire indispensable) dans la plupart des procédés technologiques nécessitant une précision submicronique. Elle permet ainsi de dessiner des motifs à l'échelle nanométrique avec une haute résolution sur des résines électro-sensibles.

Schématiquement la technique de lithographie électronique consiste à balayer un faisceau d'électrons pour dessiner un motif sur une surface recouverte de résine sensible à l'irradiation électronique. Un appareil de lithographie électronique (Fig. 2.10) est typiquement constitué d'une colonne, semblable à celle que l'on trouve sur un microscope électronique à balayage, équipée d'un système de déflexion électrostatique ou magnétique du faisceau et d'un dispositif de micro-déplacement de la platine porte-échantillon contrôlé par interférométrie. Ce système permet un contrôle excellent sur la position des motifs (de l'ordre du nm).

La résolution de cette technique dépend essentiellement du diamètre, de l'énergie du faisceau d'électrons et de la résine utilisée. Dans notre cas, la résine employée est du PolyMethyl-MethAcrylate (PMMA).

La manière de procéder est la suivante. Tout d'abord, le PMMA est déposé sur un substrat propre à l'aide d'une tournette et recuit à 160° pendant plus d'une heure. Ensuite l'échantillon est insolé par le masqueur électronique (JEOL JBX 5D2U). La résine est ensuite développée.

L'interaction des électrons avec la résine provoque la rupture de liaisons chimiques, diminuant la masse moléculaire moyenne dans les zones irradiées. Si cette

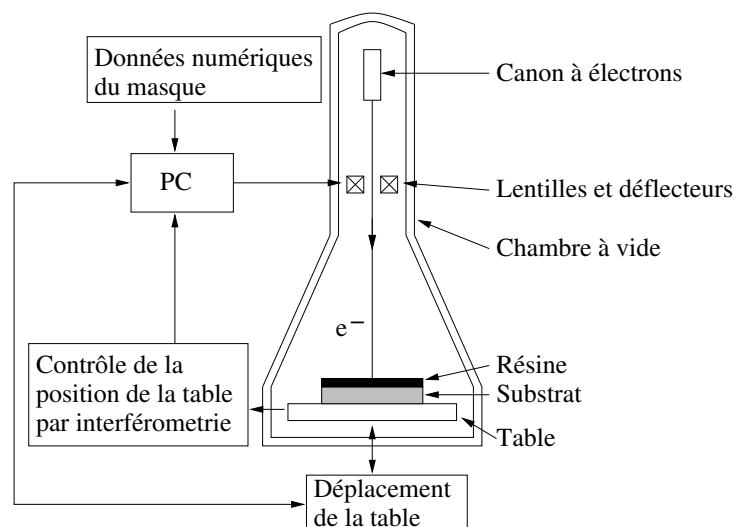


FIG. 2.10 – Schéma simplifié du masqueur électronique.

diminution est suffisamment significative, il est possible de dissoudre ces éléments grâce à un solvant spécifique de ces molécules. Ce type de résine est qualifié de positif (le PMMA notamment). Le solvant typique est un mélange de Methyl IsoButyl Ketone (MIBK) et d'isopropanol.

Après développement, les flancs obtenus ne sont pas verticaux (surtout si la résine est épaisse). En effet, contrairement à ce que l'on pourrait croire, la modification de la résine ne résulte pas de l'interaction directe des électrons très énergétiques du faisceau incident. Au cours de leur trajectoire, les électrons du faisceau incident cèdent leur énergie en arrachant des électrons dans la résine et dans le substrat. Seuls les électrons de faible énergie cinétique (principalement des électrons secondaires) insolent la résine. Par ailleurs lors des chocs dans la résine et le substrat la trajectoire des électrons du faisceau est déviée, ce qui a pour conséquence d'élargir la taille de la zone insolée (Fig. 2.11).

La zone insolée est alors bien plus large que nominale du fait de l'émission d'électrons rétrodiffusés dans le substrat. On parle de poire d'interaction pour qualifier l'ensemble des trajectoires des électrons dans l'échantillon. Cette poire agit comme une seconde source située sous la résine et irradiant celle-ci sur une surface beaucoup plus grande que la taille du spot initial et avec une dose nettement plus faible. Pour rendre cet effet de proximité négligeable il convient d'ajuster la dose émise pour garder la dose d'insolation due aux électrons secondaires inférieure au seuil de révélation de la résine. Il existe pour cela des logiciels commerciaux, mais bien souvent la connaissance de la résine et du substrat permet d'avoir une gamme de doses susceptibles de convenir. Il reste alors à procéder à différents essais de doses

pour obtenir les bons flancs de résine après développement et permettre le lift-off lors de la réalisation du masque.

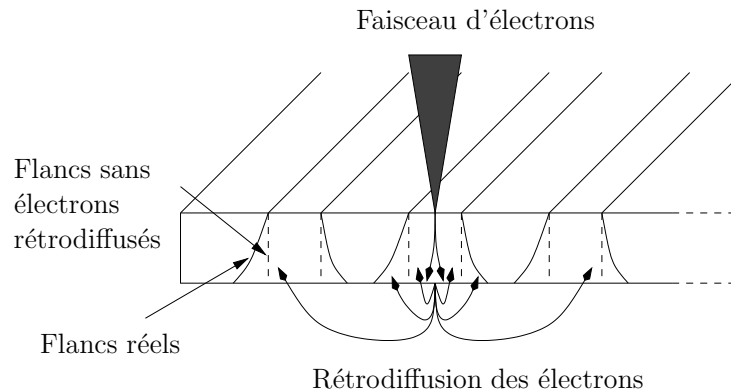


FIG. 2.11 – Effets de proximité : les électrons rétrodiffusés par le substrat augmentent la dose d'exposition.

Gravure ionique réactive (RIE, Reactive Ionic Etching)

Les gravures RIE permettent de graver une ou plusieurs couches de matériau avec un excellent contrôle des flancs. Par opposition aux gravures chimiques (humides), les gravures RIE sont dites sèches car elles se déroulent dans un plasma créé entre deux électrodes situées dans une chambre à vide.

La gravure RIE est une technique physico-chimique mettant en jeu, d'une part, un bombardement de l'échantillon par le plasma (pulvérisation) et d'autre part, des réactions chimiques en surface du matériau. La prépondérance d'un phénomène par rapport à l'autre est fixée par le choix des gaz et de la polarisation appliquée entre les 2 électrodes. D'ordinaire, on privilégie le phénomène chimique car ce processus peut être sélectif en fonction des couches de l'échantillon et peut conduire à des vitesses de gravure beaucoup plus grandes que dans le premier cas. La gravure résulte alors de la réaction entre les atomes de la surface et le gaz du plasma, formant une molécule qui quitte ensuite le substrat (Fig. 2.12). Le bombardement ionique n'est là que pour assister l'arrivée des espèces réactives sur le substrat et le départ des molécules formées par la réaction chimique de surface. Le mécanisme de la gravure RIE peut se résumer ainsi :

- la génération des particules réactives du plasma,
- le déplacement de ces particules vers la surface,
- l'adsorption des particules réactives sur la surface,
- la réaction en surface des molécules réactives avec le matériau à graver,
- la désorption des produits de réaction,

- l'extraction des molécules formées hors de l'enceinte.

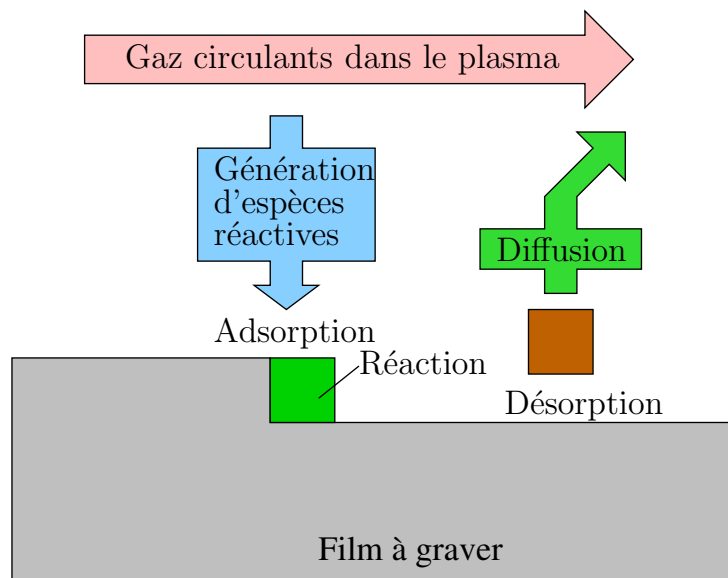


FIG. 2.12 – Schéma de principe de la réaction de gravure plasma.

Le contrôle des flancs de gravure se fait en jouant sur la pression, la température, la concentration des gaz introduits pour la création du plasma et de la puissance RF d'excitation du plasma. En jouant sur ces différents paramètres, il est ainsi possible de contrôler l'anisotropie et la sélectivité de la gravure en fonction des matériaux rencontrés.

Le contrôle de la gravure RIE est suivi par un système interférométrique. Il consiste à éclairer l'échantillon par un laser He-Ne. On suit alors les interférences entre les ondes incidentes et réfléchies par l'échantillon.

Le signal interférométrique oscille en fonction du temps au fur et à mesure que l'on grave la surface du matériau. Cette mesure optique est extrêmement riche et permet de remonter aux paramètres de gravure. Tout d'abord en comptant le nombre d'oscillations, on remonte à l'épaisseur gravée et à la vitesse de gravure. Le changement de vitesse de gravure indique également une modification dans la composition chimique de l'échantillon, *i.e.* une interface entre deux couches différentes. Par ailleurs, l'arrêt d'une gravure est caractérisé par un signal interférométrique constant au cours du temps à condition que l'état de surface ne soit plus modifié. Or la pulvérisation introduit de la rugosité en surface et peut se traduire par une diminution du signal réfléchi.

Lors du développement du procédé de fabrication des échantillons, un soin tout particulier a été apporté au contrôle de la gravure du nitrure. En effet, la technique de double lift-off employée pour la réalisation des réseaux métalliques impose un très bon contrôle des flancs de gravure du nitrure. Idéalement, ces flancs doivent être bien

verticaux et légèrement en retrait par rapport au masque de gravure (Fig. 2.13(a,c)). Cela permet de réduire les risques de dépôts d'or sur le nitrure lors de la métallisation de l'échantillon, ce qui rendrait plus difficile la gravure du Si_3N_4 (Fig. 2.13(b,d)). Mais cela risquerait surtout de laisser des résidus de métal aux bords des fentes du réseau, ce qui aurait pour conséquence de dégrader les propriétés optiques de la structure.

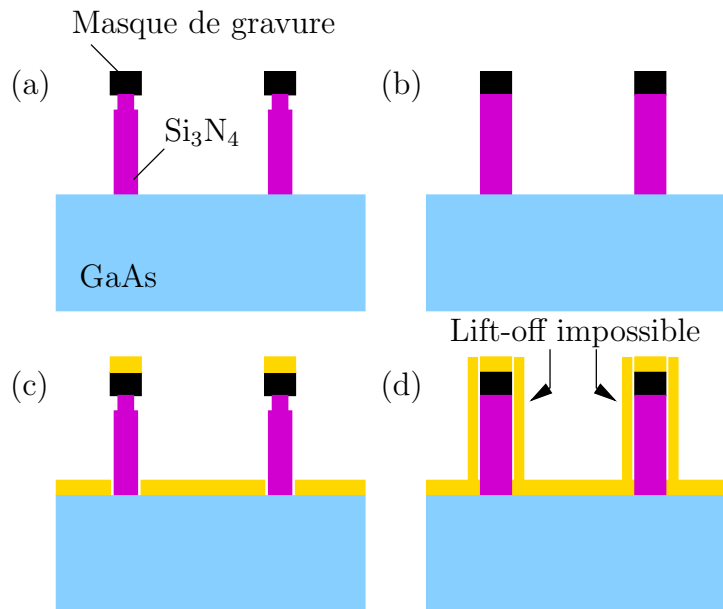


FIG. 2.13 – Les piliers de Si_3N_4 peuvent être gravés soit par une combinaison de gravure isotrope puis anisotrope (a) ou directement par une gravure anisotrope (b). La discontinuité introduite dans le flanc de nitrure par la sous-gravure sous le masque métallique élimine les difficultés du lift-off en cas de dépôt métallique mal-orienté par rapport à la surface (c), contrairement au cas (d).

Pour cela, la gravure RIE isotrope permet de dégager le nitrure sous le masque du réseau. Cela permet de laisser une voie d'accès à l'acide fluorhydrique lors de la dernière étape de la fabrication (Fig. 2.9(f)). Par ailleurs, l'échantillon est placé "correctement" dans le bâti de dépôt métallique de sorte que le dépôt se fasse avec une incidence quasi-normale à l'échantillon. Cela permet d'éviter le dépôt de métal sur les flancs de Si_3N_4 (Fig. 2.13(d)). Le retrait du nitrure sous le masque de gravure est contrôlé avec une bonne reproductibilité. Pour un temps de gravure de 6 min, la sous-gravure est d'environ 30 nm de chaque côté du nitrure. Deux gaz sont introduits dans le plasma pour modifier la gravure du nitrure : du SF_6 pour les gravures isotropes et un mélange SF_6/CHF_3 pour les gravures anisotropes.

Cependant, nous avons constaté que le dégagement créé sous le masque de gravure se comblait lors de la gravure RIE anisotrope (Fig. 2.9(c)). Les flancs obtenus

étaient bien verticaux, mais le lift-off final posait parfois problème. Lors de la gravure, un redépôt des espèces gravées venait combler le dégagement sous le masque de nitrure. Afin d'éliminer ce problème, nous avons modifié les conditions de gravure en augmentant la concentration d'un gaz employé dans le plasma (SF_6) pour diminuer l'anisotropie de la gravure. Par cette opération, nous avons éliminé ce problème en mettant légèrement en retrait le nitrure sur toute sa hauteur et pas seulement sous le masque.

Traitement de surface

Deux raisons nous ont conduit à faire un traitement de surface au HCl immédiatement avant la métallisation de l'échantillon :

- Après gravure du nitrure, on constatait quasi-systématiquement une grande rugosité sur le substrat, suite à un redépôt d'espèces chimiques (non-identifiées) présentes dans l'enceinte du bâti (Fig. 2.9(c)). Malgré plusieurs essais de gravure RIE, il était impossible d'éliminer ces redépôts de la surface de l'échantillon, ce qui aurait provoqué une forte rugosité du film métallique et n'est donc pas compatible avec des mesures optiques de bonne qualité. Nous avons donc traité la surface au HCl, ce qui a permis d'éliminer ce redépôt.
- L'or a une mauvaise adhérence sur le GaAs. En traitant la surface du substrat au HCl, on élimine la fine couche d'oxyde et on libère des liaisons chimiques en surface (liaisons pendantes), ce qui facilite l'accroche de l'or sur le GaAs. Avec cette opération, nous avons pu obtenir l'adhésion de l'or sur GaAs, avec des épaisseurs importantes (250 nm) sans décollement du métal.

Dans notre cas, un temps de gravure d'au moins 3 min est nécessaire pour éliminer complètement la couche d'oxyde et le redépôt formé lors de la gravure. Il faut toutefois limiter cette gravure dans le temps : on constate une gravure du titane utilisé dans la couche d'accroche du masque de gravure lorsque le temps de gravure dépasse 10 min. Cela peut provoquer un décrochement du masque du pilier de Si_3N_4 et rendre impossible la suite de la fabrication de l'échantillon.

2.3.4 Bilan et réalisation d'échantillons

Les développements technologiques réalisés au cours de la thèse comportent plusieurs intérêts majeurs pour ce type d'étude :

- l'**universalité du procédé de fabrication** autorise la conception de réseaux métalliques de géométries très différentes. Lors de ma thèse, des réseaux métalliques 1D de faible épaisseur (quelques dizaines de nm) ont pu ainsi être

- réalisés. Mais la même technique de fabrication a également permis la fabrication de réseaux 2D d'épaisseurs très différentes (Fig. 2.14).
- **l'élimination de la couche d'accroche** entre l'or et le GaAs. Les propriétés des plasmons de surface sont très sensibles à l'environnement proche de l'interface métallique. Généralement, on utilise une couche de titane ou de chrome pour améliorer l'adhésion de l'or sur un diélectrique. Cependant, les propriétés optiques de ces matériaux sont très mauvaises à cause de leur absorption. Lors de la thèse de Stéphane Collin, cette influence de la couche d'accrochage en Ti avait été démontrée pour des épaisseurs aussi faibles que 1 nm, et c'est pourquoi, nous avons cherché à l'éliminer.
 - les temps d'insolation sont plus faibles par ce procédé de double lift-off si l'on travaille sur des résines positives (PMMA), en insolant uniquement les parties où il n'y a pas de métal à la fin de la fabrication c'est-à-dire les ouvertures dans les films métalliques (leurs surfaces dépassant rarement 20 % de la surface de l'échantillon). Il faut de plus noter que l'utilisation de résines électrosensibles négatives ne permet pas de réaliser des dépôts épais, car les flancs de résine ne sont pas favorables comme dans le cas du PMMA (Fig. 2.11)

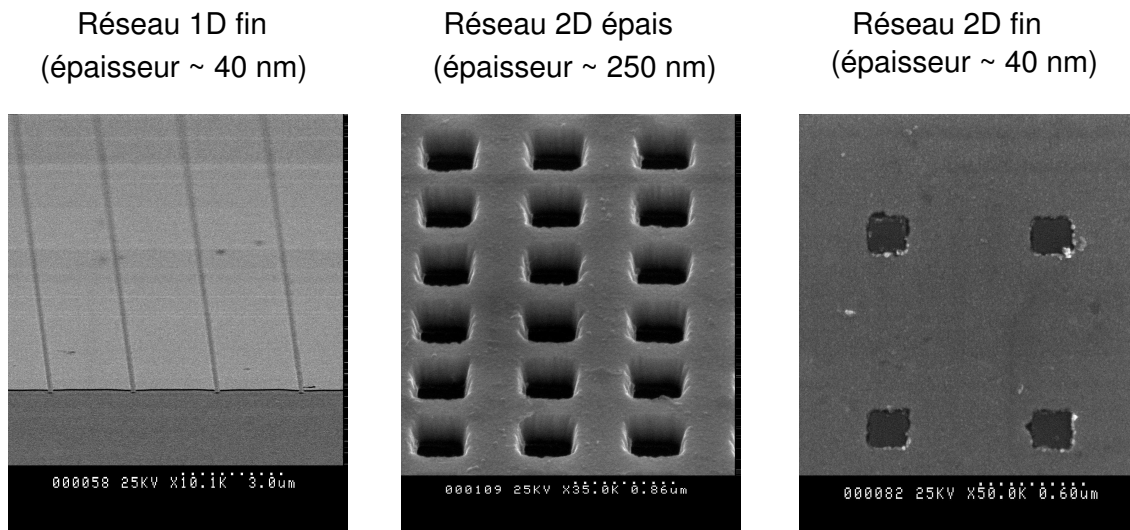


FIG. 2.14 – Exemple de structures réalisées par la technique du “double lift-off”. Le procédé de fabrication permet de réaliser des structures ayant des géométries très différentes.

2.4 Conclusion

Nous avons décrit dans ce chapitre les propriétés générales et les relations de dispersion des plasmons de surface dans les cristaux plasmoniques 1D. La modélisation électromagnétique des modes basée sur une méthode modale et le formalisme de matrice S permettent de déterminer les relations de dispersion dans les réseaux métalliques 1D. Enfin les procédés de fabrication développés pour les réseaux métalliques ont été détaillés à la fin du chapitre.

Les outils décrits ici permettent de modéliser et de réaliser des cristaux plasmoniques 1D et 2D. Dans les chapitres 4 et 5, nous comparerons le comportement des échantillons à ceux de la modélisation. L'étude de ces structures sera réalisée par des mesures optiques similaires aux expériences de Wood (*i.e.* des caractérisations optiques résolues angulairement et spectralement). Nous montrerons que la mesure des diagrammes de transmission permet d'une part de déterminer les relations de dispersion des plasmons de surface dans les cristaux plasmoniques et d'autre part d'étudier les couplages entre les plasmons de surface.

Chapitre 3

Caractérisations optiques résolues angulairement et spectralement

La plupart des travaux expérimentaux en plasmonique se limite à l'étude de la transmission de la lumière à travers des réseaux métalliques en incidence normale. Très peu d'équipes s'intéressent à la mesure des diagrammes de transmission de la lumière à travers les cristaux plasmoniques. Or ces diagrammes permettent une détermination expérimentale des relations de dispersion des plasmons de surface et sont très riches d'enseignement. Ils permettent notamment de comprendre les conditions d'excitation des plasmons de surface dans les cristaux plasmoniques, ou encore l'impact de la structuration d'un film métallique sur les propriétés des modes de surface (en terme de propagation, couplage, ou émission) comme nous allons le voir dans les chapitres 4 et 5. De plus les conditions expérimentales d'excitation des plasmons de surface ne reflètent pas complètement celles supposées dans les modélisations électromagnétiques des cristaux plasmoniques : les réseaux métalliques ne sont pas toujours excités par des ondes planes et les dimensions des structures sont comparables aux longueurs de propagation des plasmons de surface.

Nous avons donc souhaité développer un banc de caractérisation optique, d'une part, pour déterminer la nature des modes de surface se propageant dans les réseaux métalliques, et d'autre part, pour étudier les effets liés aux interactions entre ces modes. Le banc de caractérisation doit permettre de déterminer expérimentalement les courbes de dispersion afin de les comparer à celles de la modélisation.

Ce chapitre est consacré à la description de banc de caractérisation développé au cours de ma thèse. Nous présenterons tout d'abord les objectifs du montage ainsi que ces différents constituants. Ensuite, nous détaillerons le principe du spectromètre à transformée de Fourier et ses performances en terme de résolution spectrale. Nous

donnerons à la fin du chapitre les performances de notre montage (résolution angulaire, domaine de fonctionnement).

3.1 Présentation générale du dispositif expérimental

3.1.1 Objectifs attendus pour le banc de caractérisation

Pour déterminer les relations de dispersion des cristaux plasmonique, nous mesurons la réponse angulaire et spectrale de la réflexion et de la transmission des réseaux métalliques nanostructurés. Ces mesures doivent s'étendre sur un large domaine spectral (typiquement une décade) et angulaire avec une bonne résolution. De plus, le montage doit être automatisé afin de permettre une caractérisation optique systématique des échantillons réalisés. Enfin l'approche employée lors de la conception du banc de caractérisation est telle qu'elle n'empêche pas a priori d'étendre ces mesures à différents dispositifs optiques (ex : miroir de Bragg, cristaux photoniques, dispositifs de l'optique diffractive, ...).

Afin d'étendre la mesure sur un domaine spectral le plus large possible, on utilise un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (IRTF) installé en salle blanche (Bruker Equinox 55/S). La mesure peut se faire du proche infrarouge jusqu'à l'infrarouge lointain, et cela grâce aux différentes sources (filament de Tungstène, Global) et détecteurs (Si, InSb, MCT) disponibles. L'étude angulaire se fait à l'aide de platines de rotation motorisées.

3.1.2 Description simplifiée du montage

Le banc de caractérisation se décompose en trois parties (Fig. 3.1) :

A - la source : le spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (spectromètre I.R.T.F) : il permet en une mesure de sonder spectralement la réponse d'un échantillon sur un large domaine de longueurs d'onde (de 0.7 à 16 μm pour notre modèle).

B - le système de focalisation : il permet d'adapter le faisceau incident qui sort du spectromètre IRTF (large et sans polarisation) en un faisceau de diamètre maîtrisé et polarisé linéairement.

C - le système de détection : deux plateaux entraînés par deux platines de rotation motorisées et coaxiales permettent de changer indépendamment l'angle d'incidence du faisceau sur l'échantillon et l'angle de détection du signal.

Dans la suite, nous allons détailler chacune de ces parties.

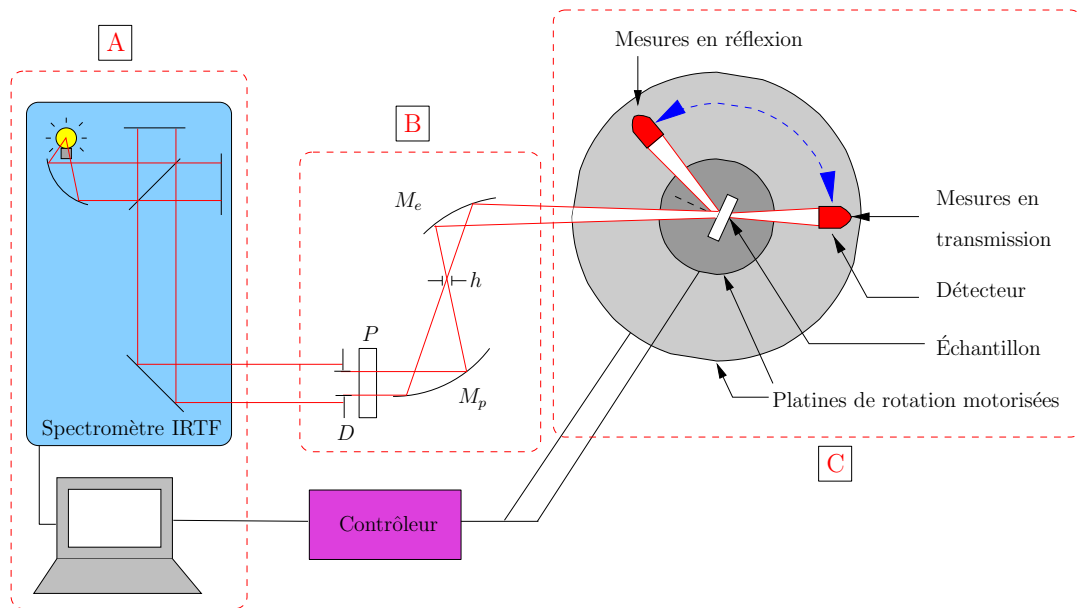


FIG. 3.1 – Schéma simplifié des trois parties du banc de caractérisation optique résolu angulairement et spectralement : (A) spectromètre IRTF, (B) optique de focalisation, (C) porte-échantillon et platines de contrôle de l'angle d'excitation et de détection. Le déplacement du détecteur (symbolisé par la double flèche bleue) montre le fonctionnement pour une mesure en transmission ou en réflexion.

3.1.3 Étude angulaire des échantillons

Le spectromètre IRTF permet de mesurer la réflexion et la transmission de la lumière sur un échantillon en fonction de la longueur d'onde pour une incidence fixée. La caractérisation angulaire impose l'utilisation de deux platines de rotation : l'une pour l'échantillon et l'autre pour le détecteur (Fig. 3.2). Évidemment les axes de rotation des deux platines doivent être confondus. La rotation de l'échantillon se fait par l'intermédiaire de la platine supérieure et permet le contrôle de l'angle d'incidence. La platine inférieure permet le déplacement du détecteur afin de faire des mesures en transmission ou en réflexion, de n'importe quel ordre diffracté par une structure "réseau". Étant donné l'encombrement du détecteur, il faut utiliser un miroir de renvoi entre l'échantillon et le détecteur (Fig. 3.2), ce qui permet de mesurer la lumière réfléchi à des angles proches de l'incidence normale. Il est également possible de mettre une lame séparatrice pour faire des mesures de réflexion à incidence nulle.

L'excellente précision affichée par le constructeur des platines (0.001°) nous permet de considérer leur position angulaire comme étant absolue. Par contre la diver-

3.1. Présentation générale du dispositif expérimental

gence du faisceau et la fixation du porte-échantillon peuvent entraîner un décalage de quelques dixièmes de degré, que l'on peut corriger grâce à la précision des platines.

Afin d'automatiser au maximum le montage, les deux platines (M-URM80PP et RV160CCHL de Newport) sont motorisées et pilotées via le contrôleur (XPS de Newport). Ce dernier est piloté via ethernet par un logiciel que nous avons développé en langage TCL, et qui commande également le spectromètre IRTF.

Un porte-échantillon permet de maintenir la structure à étudier en position verticale. Nous l'avons installé sur un goniomètre pour corriger si nécessaire l'alignement de la polarisation du champ incident avec les axes de symétrie du réseaux (définis par les directions de périodicité). L'ensemble est placé sur une platine de translation manuelle (M-562-XYZ de Newport, de 13 mm de course dans chaque direction). Ces 3 degrés de liberté supplémentaires permettent de placer l'échantillon au croisement de l'axe de rotation des platines et de l'axe optique (afin que la même zone soit illuminée pendant toute la rotation de l'échantillon) et de choisir un motif de l'échantillon.

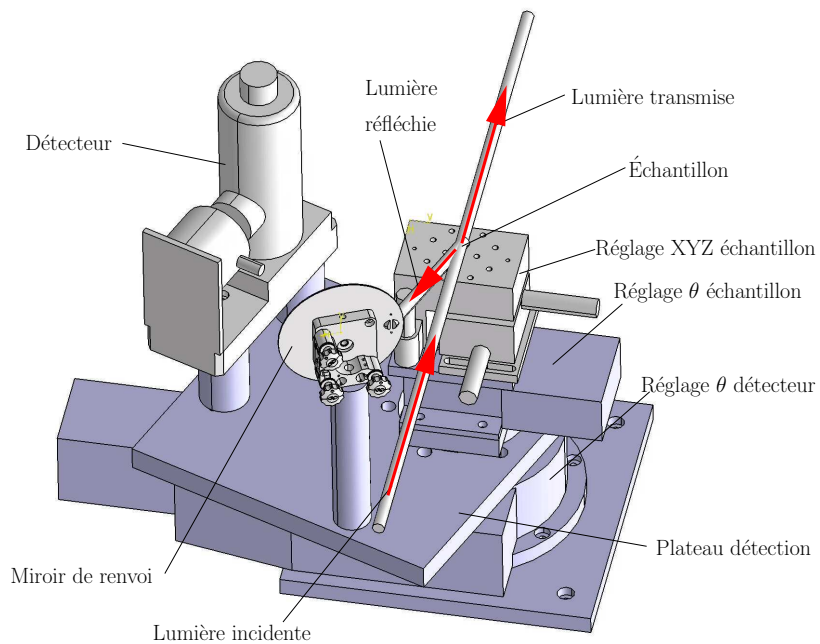


FIG. 3.2 – Schéma simplifié des platines et du plateau de détection dans le cas d'une mesure de réflexion en incidence non-normale (le goniomètre, l'échantillon et le porte-échantillon ne sont pas représentés).

3.1.4 Système de focalisation

Le spectromètre IRTF s'utilise couramment avec un échantillon placé dans le compartiment interne, mais il est également prévu avec différentes sorties pour travailler avec l'échantillon et le détecteur placés en externe. Le diamètre du faisceau en sortie du spectromètre est d'environ 4 cm, ce qui est bien supérieur à la dimension de nos réseaux (2 mm de côté). Il est indispensable, pour calibrer nos mesures, de focaliser le faisceau incident sur l'échantillon. Le système de focalisation que nous avons installé est **achromatique**, avec des miroirs parabolique et elliptique qui fonctionnent hors-axes, pour ne pas cacher une partie du faisceau incident (Fig. 3.3).

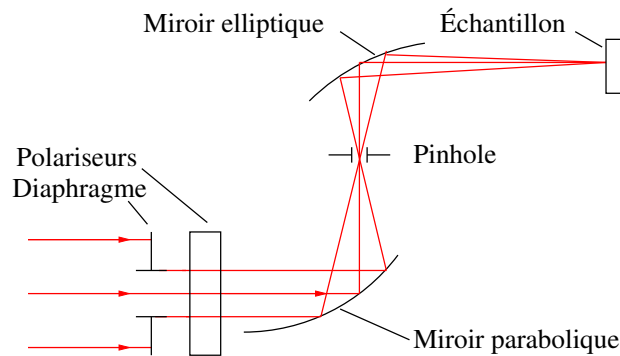


FIG. 3.3 – Schéma de l'optique de focalisation.

Le miroir parabolique permet d'obtenir l'image de la source au foyer des deux miroirs. Nous avons choisi un miroir identique à celui utilisé devant la source à l'intérieur du spectromètre. Le pinhole permet de choisir la taille de cette source virtuelle placée sur l'un des foyers du miroir elliptique. La taille de l'image du pinhole sur l'échantillon est défini par le grandissement du miroir elliptique. Enfin le diaphragme situé avant le polariseur permet de contrôler la divergence du faisceau incident sur l'échantillon. Les miroirs utilisés proviennent de Bruker : le premier est un miroir parabolique hors-axe de 69 mm de focale et le deuxième est un miroir elliptique de focales 40 et 250 mm. Tous les deux sont des miroirs en or. Avec un pinhole de 250 μm de diamètre, la tache image sur l'échantillon est de 1.7 mm.

Nous avons deux polariseurs pour balayer le spectre depuis la fin du visible jusqu'au moyen infrarouge :

- un polariseur proche infrarouge de 1 μm à 2.5 μm ,
- un polariseur holographique en BaF₂ moyen infrarouge de 2 μm à 12 μm .

Leurs performances seront décrites au § 3.3.2.

3.2 Le spectromètre à transformée de Fourier

Un spectromètre infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF) est composé d'un interféromètre de Michelson avec un miroir mobile et éclairé par une source à spectre large. Le déphasage entre les deux bras de l'interféromètre produit une interférence différente pour toutes les longueurs d'onde. Le signal mesuré est l'intensité totale, fonction de la position du miroir mobile. Par une transformée de Fourier, on obtient le spectre de la source. Un spectromètre IRTF permet en une simple acquisition d'obtenir un spectre sur une grande gamme spectrale dans l'infrarouge, avec une très bonne résolution en longueur d'onde et un très bon rapport signal/bruit.

Le fonctionnement d'un interféromètre de Michelson est rappelé ici, afin de quantifier les limites de résolution spectrale en tenant compte des différents éléments de l'optique de focalisation (pinhole, diaphragme).

3.2.1 Principe du spectromètre à transformée de Fourier

Onde plane monochromatique

Le schéma général d'un interféromètre de Michelson est rappelé dans la Fig. 3.4. Nous supposons ici que l'onde incidente est plane et monochromatique, et que la séparatrice (S_p) réfléchit 50 % et transmet 50 % de la lumière. Les miroirs (M_1) et (M_2) sont identiques.

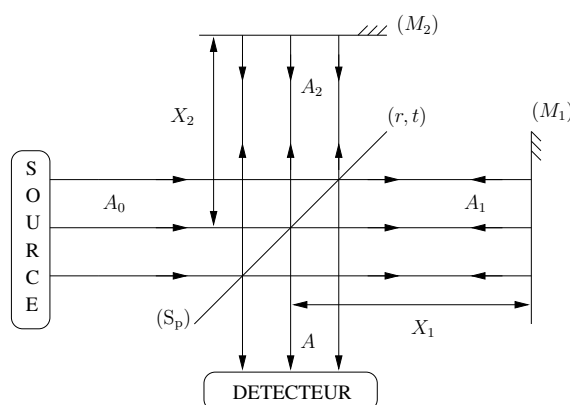


FIG. 3.4 – Schéma général d'un interféromètre de Michelson : l'onde plane provenant de la source est divisée par la séparatrice (S_p) sur les deux bras de l'interféromètre, puis réfléchi par les miroirs (M_1 et M_2) pour se recombiner et interférer sur le détecteur du fait de la différence de marche $\delta = 2(X_1 - X_2)$.

L'onde incidente ($A_0 e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}$) se propage jusqu'à la séparatrice, où la moitié de la lumière est transmise sur le miroir (M_1) et l'autre moitié est réfléchi sur

le miroir (M_2). Après réflexion sur les deux miroirs, une partie de la lumière de chaque bras est à nouveau transmise ou réfléchi par la séparatrice pour atteindre le détecteur. Soit A l'amplitude complexe de champ électrique au niveau du détecteur. En prenant en compte la propagation dans chacun des bras du Michelson et les coefficients de réflexion $r(\sigma)$ et transmission $t(\sigma)$ de la séparatrice (avec $\sigma = 1/\lambda$ le nombre d'onde), le champ sur le détecteur s'exprime :

$$A = A_0(\sigma)r(\sigma)t(\sigma)e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} (1 + e^{ik\delta}) \quad (3.1)$$

où δ est la différence de marche entre les ondes A_1 et A_2 ($\delta = 2(X_1 - X_2)$) sur la Fig. 3.4). L'intensité I du champ s'obtient de la façon suivante :

$$\begin{aligned} I(\delta) &= |A|^2 \\ I(\delta) &= S(\sigma) (1 + \cos(2\pi\sigma\delta)) \end{aligned} \quad (3.2)$$

avec $S(\sigma) = 2|r(\sigma)t(\sigma)A_0(\sigma)|^2$. $I(\delta)$ est le signal mesuré par le détecteur en fonction de la différence de marche δ . Comme le montre l'Éq. (3.2), la mesure donnée par le détecteur est la somme d'une composante continue $S(\sigma)$ et d'une composante modulée $S(\sigma) \cos(2\pi\sigma\delta)$. C'est cette dernière qui nous intéresse plus particulièrement lors de mesures spectrométriques, la mesure de $S(\sigma) \cos(2\pi\sigma\delta)$ sur l'ensemble des fréquences constituant l'interférogramme.

Onde plane polychromatique

Pour généraliser au cas d'une source polychromatique, il faut sommer les intensités obtenues à chacune des fréquences. Ainsi on obtient (en négligeant la partie continue du signal mesuré) :

$$I(\delta) = \int_0^{+\infty} S(\sigma) \cos(2\pi\sigma\delta) d\sigma \quad . \quad (3.3)$$

Le signal du détecteur $I(\delta)$ apparaît comme un interférogramme (Fig. 3.5), *i.e.* un signal proportionnel à l'intensité en fonction de la position du miroir (δ). L'interférogramme est la somme de toutes les fréquences du faisceau. Le spectre $S(\sigma)$ peut être obtenu par une transformée de Fourier de l'interférogramme. Pour cela, il est nécessaire de construire une fonction paire à partir de $S(\sigma)$: $S_p(\sigma) = (S(\sigma) + S(-\sigma))/2$ et on peut écrire :

$$I(\delta) = \int_{-\infty}^{+\infty} S_p(\sigma) e^{2i\pi\sigma\delta} d\sigma \quad . \quad (3.4)$$

3.2. Le spectromètre à transformée de Fourier

Le cosinus a été remplacé par l'exponentielle complexe car $S_p(\sigma)$ est une fonction réelle paire et la contribution de la partie imaginaire de l'Éq. (3.4) est nulle. Pour retrouver le spectre incident S_p , il faut faire une transformée de Fourier inverse :

$$S_p(\sigma) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(\delta) e^{-2i\pi\sigma\delta} d\delta \quad . \quad (3.5)$$

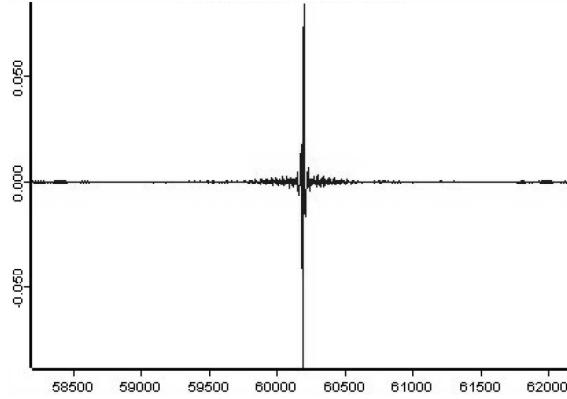


FIG. 3.5 – Forme d'un interférogramme obtenu avec le FTIR Equinox 55/S de Bruker.

3.2.2 Limites physiques fondamentales et résolution

Déplacement fini du miroir mobile

L'Éq.(3.5) permet de retrouver le spectre à partir de l'interférogramme. Pour cela, il faudrait déplacer le miroir mobile de $-\infty$ à $+\infty$, ce qui est évidemment impossible dans la pratique. Le fait de limiter le déplacement du miroir entre deux valeurs maximales ($-x_m$ et $+x_m$) limite la résolution de l'appareil :

$$I_{obs}(\sigma) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(\delta) \Pi\left(\frac{\delta}{x_m}\right) \cos(2\pi\sigma\delta) d\delta \quad (3.6)$$

où $\Pi(x)$ est la fonction porte définie comme :

$$\Pi(x) = \begin{cases} 1 & \text{si } |x| \leq 1 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad . \quad (3.7)$$

Le spectre observé $S_{obs}(\sigma)$ est donc la transformée de Fourier (TF) de l'interférogramme multipliée par une fonction porte :

$$S_{obs} = TF[I_{obs}] = TF[I(x)] * TF[\Pi(\frac{x}{L})] \quad (3.8)$$

$$= S_p(\sigma) * 2L \text{sinc}(2\pi L\sigma) \quad (3.9)$$

où * désigne le produit de convolution. Le spectre est convolué par un sinus cardinal de largeur $1/2x_m$. Donc si Δ_m désigne l'amplitude maximale du déplacement des miroirs (ici $\Delta_m = 2x_m$), la résolution spectrale s'exprime donc :

$$\Delta\sigma = \frac{1}{\Delta_m} . \quad (3.10)$$

En conclusion, pour augmenter la résolution spectrale des mesures, il faut augmenter l'amplitude des déplacements du miroir mobile du spectromètre IRTF. Dans la pratique notre spectromètre est limité à 0.2 cm^{-1} .

Divergence du faisceau incident

Idéalement, une source placée au plan focal objet d'un système optique permet de passer d'une onde sphérique à une onde plane parallèle à l'axe optique. Cependant, il est impossible d'obtenir un tel résultat dans la pratique, car cela nécessite une source ponctuelle infiniment petite. En conséquence, un point source hors-axe donnera lieu à une onde plane qui fait un angle α par rapport à l'axe optique (Fig. 3.6). Le faisceau issu du système optique est alors légèrement divergent. Dans la suite, nous allons montrer en quoi cela modifie la différence de marche, la forme de l'interférogramme et la résolution spectrale.

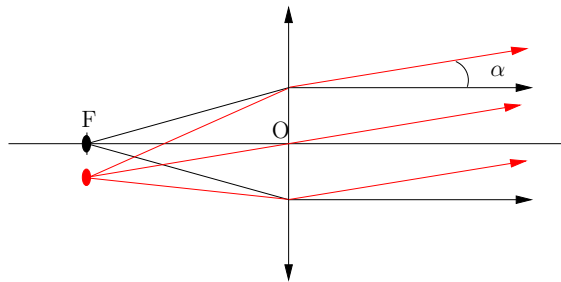


FIG. 3.6 – Effet d'une source étendue pour le faisceau incident : un point A situé dans le plan focal objet du système optique, mais en dehors du foyer F donne lieu à une onde plane inclinée par rapport à l'axe optique d'un angle α

3.2. Le spectromètre à transformée de Fourier

Considérons une onde plane qui arrive sur l'interféromètre de Michelson avec une inclinaison α par rapport avec l'axe optique (Fig. 3.7). Soit $x/2$ la distance entre le miroir M_1 et le miroir virtuel M'_2 (image du miroir M_2 sur l'autre bras de l'interféromètre). La différence de chemin optique δ se calcule comme la somme des segments AB et BC, ce qui donne :

$$\begin{aligned} \delta &= AB + BC = \frac{x}{2 \cos \alpha} + \frac{x}{2 \cos \alpha} \cos 2\alpha \\ &= x \cos \alpha \quad . \end{aligned} \quad (3.11)$$

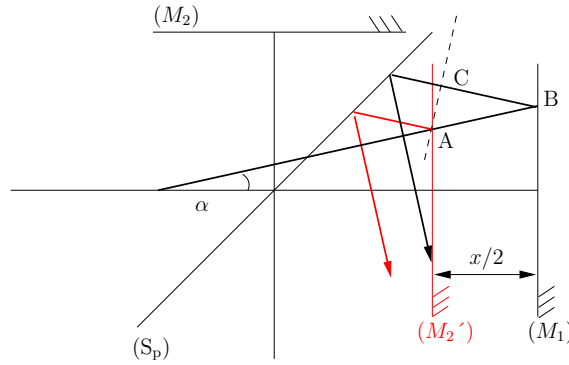


FIG. 3.7 – Source ponctuelle hors-axe optique illuminant un interféromètre de Michelson. Le miroir (M'_2) est l'image du (M_2) sur l'autre bras de l'interféromètre.

Dans le cas d'un faisceau de lumière monochromatique, la contribution à l'interférogramme d'un rayon hors-axe, de l'élément d'angle solide $d\Omega$ s'appuyant sur l'angle α , s'écrit :

$$dI(x) = \cos(2\pi\sigma x \cos \alpha) d\Omega \quad (3.12)$$

avec $d\Omega = \sin \alpha d\alpha d\phi$. En intégrant sur l'étendue de la source, on obtient la figure d'interférence :

$$I(x) = \int dI(x) = \int_0^{2\pi} \int_0^{\alpha_m} \cos(2\pi\sigma x \cos \alpha) \sin \alpha d\alpha d\phi \quad (3.13)$$

avec α_m l'angle maximal que peut faire le faisceau hors-axe avec l'axe optique. En supposant que la source étendue de diamètre D est au foyer d'une optique de focalisation de focale F (Fig. 3.8), α_m s'exprime comme :

$$\alpha_m \approx \tan \alpha_m = \frac{D}{2F} \quad . \quad (3.14)$$

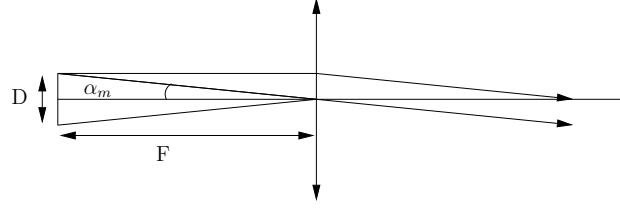


FIG. 3.8 – Calcul de l’angle de divergence maximal α_m de la source en fonction des paramètres de la focale F de l’optique de focalisation et du diamètre D de la source étendue.

L’intégrale de l’éq. (3.13) se calcule aisément en faisant le changement de variable $u = \cos \alpha$:

$$I(x) = 2\pi \left(\frac{\sin(2\pi\sigma x)}{2\pi\sigma x} - \frac{\sin(2\pi\sigma x \cos \alpha_m)}{2\pi\sigma x} \right) . \quad (3.15)$$

L’éq.(3.15) se simplifie par la relation de trigonométrie suivante :

$$\sin a - \sin b = 2 \cos\left(\frac{a+b}{2}\right) \sin\left(\frac{a-b}{2}\right) \quad (3.16)$$

et on obtient :

$$I(x) = 4\pi(1 - \cos \alpha_m) \left\{ \cos\left[2\pi\sigma x \left(\frac{1 + \cos \alpha_m}{2}\right)\right] \text{sinc}\left[2\pi\sigma x \left(\frac{1 - \cos \alpha_m}{2}\right)\right] \right\} \quad (3.17)$$

La relation entre l’angle solide et l’angle d’incidence est $\Omega_m = \pi\alpha_m^2$. On peut raisonnablement supposer que l’angle de divergence α_m est très petit et donc $\cos \alpha_m \approx 1 - \frac{\alpha_m^2}{2}$. L’expression de l’interférogramme (éq. (3.17)) se simplifie et on obtient :

$$I(x) = 2\Omega_m \cos \left[2\pi\sigma x \left(1 - \frac{\Omega_m}{4\pi}\right) \right] \text{sinc} \left[\frac{\sigma x \Omega_m}{2} \right] \quad (3.18)$$

Enfin en tenant compte du déplacement fini des miroirs, on arrive à l’expression de l’interférogramme en fonction des différents paramètres de l’interféromètre de Michelson :

$$I_{obs}(x) = 2\Omega_m \Pi \left(\frac{x}{L} \right) \cos \left[2\pi\sigma x \left(1 - \frac{\Omega_m}{4\pi}\right) \right] \text{sinc} \left[\frac{\sigma x \Omega_m}{2} \right] \quad (3.19)$$

Dans l'éq.(3.19), l'interférogramme est composé de 2 termes :

- une fonction cosinus correspondant à la réponse de la source ponctuelle : on constate cependant la présence d'un facteur d'échelle qui modifie la différence de marche et donc les fréquences mesurées.
- une fonction sinus cardinal qui module l'amplitude des interférences et qui traduit le fait que les interférences sont fonctions de x et α . Cette modulation s'annule lorsque $x\Omega_m/2\pi$ est un multiple de la longueur d'onde. Pour une position du miroir x_0 , on peut ainsi voir une figure d'interférences circulaires sur le plan d'interférence.

Pour comprendre l'impact de l'étendue de la source sur la résolution, supposons que l'interférogramme est mesuré de $-\infty$ à $+\infty$. Si l'on effectue une transformée de Fourier de l'interférogramme, on obtient alors le spectre d'une raie monochromatique (de fréquence σ_0), à savoir le profil instrumental :

$$S(\sigma_0) = 2\Omega_m TF \left[\cos\left[2\pi\sigma_0\left(1 - \frac{\Omega_m}{4\pi}\right)\right] \right] * TF \left[\text{sinc}\left[\frac{\sigma_0\Omega_m x}{2}\right] \right] \quad (3.20)$$

$$= 2\Omega_m \left[\frac{1}{2} \delta \left(\sigma \pm \sigma_0 \left(1 - \frac{\Omega_m}{4\pi}\right) \right) \right] * \frac{4\pi}{2\sigma_0\Omega_m} \Pi \left[\frac{4\pi\sigma}{\sigma_0\Omega_m} \right] \quad (3.21)$$

$$= \frac{2\pi}{\sigma_0} \left\{ \Pi \left[\frac{4\pi}{\sigma_0\Omega_m} \left(\sigma - \sigma_0 \left(1 - \frac{\Omega_m}{4\pi}\right) \right) \right] \right\} \quad (3.22)$$

La Fig. 3.9 représente l'allure de la "raie" monochromatique de l'Éq. (3.22) : il s'agit d'une fonction porte centrée sur la fréquence $\sigma_0(1 - \Omega_m/4\pi)$ et de largeur $\Delta\sigma_0$ donnée par

$$\Delta\sigma_0 = \frac{\sigma_0\Omega_m}{2\pi} \quad . \quad (3.23)$$

On obtient donc la résolution spectrale de l'interféromètre en tenant compte de la divergence du faisceau incident :

$$\frac{\Delta\sigma_0}{\sigma_0} = \frac{D^2}{8F^2} \quad . \quad (3.24)$$

Initialement dans le spectromètre IRTF, le diamètre de la source est d'environ 7 mm pour un miroir de focale $F = 69$ mm. La résolution maximale attendue en tenant compte de la divergence du faisceau incident est alors $\frac{\Delta\sigma_0}{\sigma_0} \approx 1 \times 10^{-3}$. Dans la gamme spectrale de notre étude $\lambda = 1 - 10 \mu\text{m}$ ($\sigma = 0.1 - 1 \mu\text{m}$), la résolution spectrale $\Delta\sigma$ est comprise entre $\Delta\sigma = 2 \times 10^{-5} - 2 \times 10^{-4}$. La résolution maximale

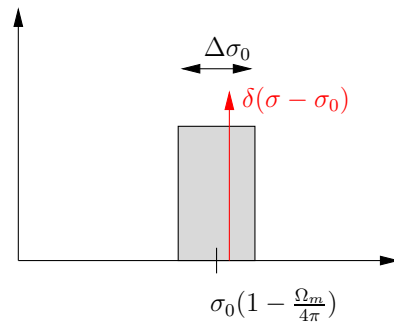


FIG. 3.9 – Influence de l’angle de divergence du faisceau incident sur la réponse spectrale de l’interféromètre : une raie monochromatique centrée sur la fréquence σ_0 devient une fonction porte de largeur $\Delta\sigma_0 = \frac{\sigma_0\Omega_m}{2\pi}$ et décalée sur la fréquence $\sigma_0(1 - \Omega_m/4\pi)$.

imposée par l’utilisateur (jusqu’à 2×10^{-5}) n’est pas toujours assurée. En diminuant la diamètre de la source virtuelle avec le pinhole h (de diamètre $D = 250 \mu\text{m}$), la résolution maximale devient $\frac{\Delta\sigma_0}{\sigma_0} \approx 1.6 \times 10^{-6}$. Nous gagnons ainsi trois ordres de grandeurs sur la résolution spectrale en limitant le diamètre de la source virtuelle placée au centre du pinhole h .

Dans ces conditions, la résolution des mesures est directement imposée par la déplacement fini du miroir mobile, *i.e.* contrôlée par l’expérimentateur lors des mesures.

3.2.3 Traitement du spectre

Des imperfections introduites pendant la mesure sont ensuite corrigées numériquement. Deux traitements sont présentés : l’apodisation et la correction de phase.

Apodisation

Le déplacement limité du miroir mobile du Michelson entraîne la convolution du spectre avec la fonction instrumentale du spectromètre (le sinus cardinal). Aucun signal n’est mesuré au delà des positions maximales du miroir mobile. Les conséquences sont alors une limitation de la résolution à $\Delta\sigma = 1/\Delta_m$ due au pic central du sinus cardinal et l’apparition de lobes alternativement positifs et négatifs. Pour diminuer l’impact de ces lobes, il est possible d’appliquer des fonctions d’apodisation qui annulent progressivement la quantité d’information mesurée aux limites de déplacement du miroir. On peut citer par exemple l’emploi d’une fonction triangle mais ce serait limiter le sujet. D’une manière générale, les fonctions d’apodisation permettent de convoluer la spectre mesuré non plus avec une fonction porte mais

avec une fonction qui s'annule moins brutalement. Le pic central est alors élargi mais au profit d'une diminution des pics secondaires.

Correction de phase

En prenant en compte les imperfections introduites par l'échantillonnage et les retards de phase dans les différents éléments optiques et électroniques, l'interférogramme est modifié par un facteur de phase complexe dépendant de la longueur d'onde. Dans les mesures, l'interférogramme ne peut plus se modéliser par une fonction réelle et symétrique. Pour remettre en forme le signal, il faut tout d'abord estimer ce facteur de phase sur une portion symétrique de l'interférogramme et l'interpoler sur le reste du spectre pour le corriger.

3.3 Performances et Perspectives

3.3.1 Performances optiques

Grandissement de l'optique de focalisation

Le grandissement de l'optique de focalisation dépend uniquement du miroir elliptique. Je l'ai déterminé en mesurant le diamètre du faisceau incident pour un pinhole = 250 μm de diamètre. La tâche image mesurée sur le plan de l'échantillon est de 1.7 mm. Le grandissement déduit de la mesure ($r=6.8$) est comparable à celui qu'on attend avec le rapport des focales du miroir elliptique ($r=250/40=6.25$).

Divergence du faisceau incident

J'ai mesuré la divergence du faisceau sur l'échantillon en prenant les dimensions du spot près du miroir elliptique et sur l'échantillon pour un pinhole de 250 μm (Fig. 3.10). Comme les miroirs choisis n'ont pas la symétrie de révolution autour de l'axe optique, le spot est de forme elliptique lorsque l'on se situe près du deuxième miroir, mais a la forme d'un disque sur l'échantillon. L'estimation de la divergence dans les 2 directions perpendiculaires à l'axe optique (D_x et D_y respectivement en bleu et en rouge sur la Fig. 3.10) est représentée en fonction de l'ouverture du diaphragme source. Cette estimation s'est faite avec la partie visible du faisceau incident. On constate que la divergence est proportionnelle au diamètre du diaphragme source. Ce résultat est conforme à l'étude réalisée pour la conception du système de focalisation grâce au logiciel OSLO EDU (tracé de rayon sans prise en compte de la

diffraction). On constate que cette divergence n'excède pas 1° (pour un pinhole de $250 \mu\text{m}$ de diamètre).

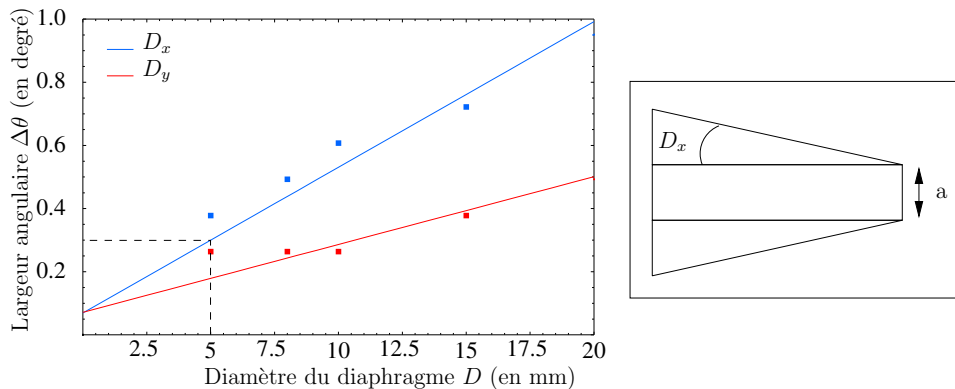


FIG. 3.10 – Étude de la divergence du faisceau incident en fonction de l'ouverture du diaphragme D de l'optique de focalisation pour un pinhole h de $250 \mu\text{m}$, dans les deux directions perpendiculaires à l'axe optique D_x (en bleu) et D_y (en rouge). Les points correspondent aux mesures réalisées et les droites sont des régressions linéaires.

Les mesures précédentes permettent d'estimer l'angle de divergence du faisceau incident d'un point de vue purement géométrique. Néanmoins la taille de la tache image nous oblige à prendre en compte la diffraction de la lumière. La Fig. 3.11 représente l'angle de diffraction théorique $\theta = \lambda/a$ en fonction de la longueur d'onde λ , où a est le diamètre de la tache image dans le plan de l'échantillon. Avec un pinhole de $250 \mu\text{m}$ de diamètre, le diamètre du faisceau incident sur l'échantillon est $a = 1.7 \text{ mm}$. Usuellement, le diaphragme D est réglé avec un diamètre de 5 mm , ce qui correspond à une divergence du faisceau incident de $\Delta\theta = \pm 0.3^\circ$.

Ainsi, pour $\lambda < 9 \mu\text{m}$, la diffraction de la lumière n'a pas d'incidence sur la focalisation du faisceau incident. Au contraire, pour $\lambda \geq 9 \mu\text{m}$, la diffraction modifie l'angle de convergence et on a alors $\pm 0.3^\circ < \Delta\theta < 0.4^\circ$.

3.3.2 Performances des détecteurs et des polariseurs

Détecteurs

Nous avons trois détecteurs à notre disposition qui nous permettent des mesures allant du visible jusqu'au moyen infrarouge : un détecteur en Silicium, un détecteur en InSb, et un détecteur en Mercure Cadmium Tellure (MCT). Ce sont tous les trois des détecteurs en photoconduction. Nous avons tracé le signal mesuré par

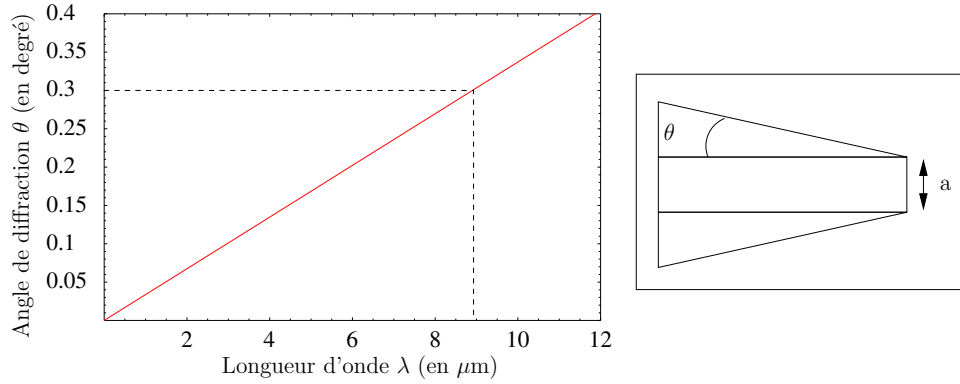


FIG. 3.11 – Angle de diffraction théorique $\theta = \lambda/a$ pour une tâche image de diamètre $a = 1.7$ mm dans le plan de l'échantillon.

le détecteur à “vide”, *i.e.* sans échantillon et sans polariseur et en changeant de détecteur (Fig. [3.12]). La source de Tungstène (proche infrarouge) combinée à la lame séparatrice en quartz de l'interféromètre de Michelson permet de sonder de la fin du visible (660 nm), jusqu'au proche IR (environ $3 \mu\text{m}$), longueur d'onde correspondant à la coupure (absorption) par la lame séparatrice. En changeant de lame séparatrice (KBr), la source (Globar) et le détecteur (MCT), il est alors possible de sonder jusqu'à $16 \mu\text{m}$ en absence de polariseur et moins si le polariseur est prévu dans une gamme plus limitée (jusqu'à $12 \mu\text{m}$ avec du BaF_2).

Sur la Fig. 3.12, nous retrouvons une série de pics fins situés entre 0.35 et $0.4 \mu\text{m}^{-1}$ dus à la vapeur d'eau. D'autres raies pour H_2O existent entre 1.3 et $1.95 \mu\text{m}^{-1}$ et au delà de $0.05 \mu\text{m}^{-1}$. Enfin des raies propre au CO_2 sont détectées autour de 0.228 et $0.239 \mu\text{m}^{-1}$.

Polariseurs linéaires

Nous utilisons deux polariseurs en fonction du domaine spectrale à couvrir. Typiquement, les mesures sont faites dans le proche infrarouge ($\sigma = 0.4 - 1.0 \mu\text{m}^{-1}$) ou le moyen infrarouge ($\sigma = 0.08 - 0.6 \mu\text{m}^{-1}$). J'ai mesuré la transmission de la lumière pour les différentes orientations des axes du polariseurs. J'ai pu ainsi déduire le taux d'extinction (t_e) et le degré de polarisation (d_p) définis comme :

$$t_e = T_1/T_2 \quad (3.25)$$

$$d_p = \frac{T_1 - T_2}{T_1 + T_2}, \quad (3.26)$$

où T_1 désigne la transmission de l'axe qui laisse passer la lumière et T_2 la transmission dans l'axe qui bloque la lumière. La transmission de l'axe passant T_1 est représentée

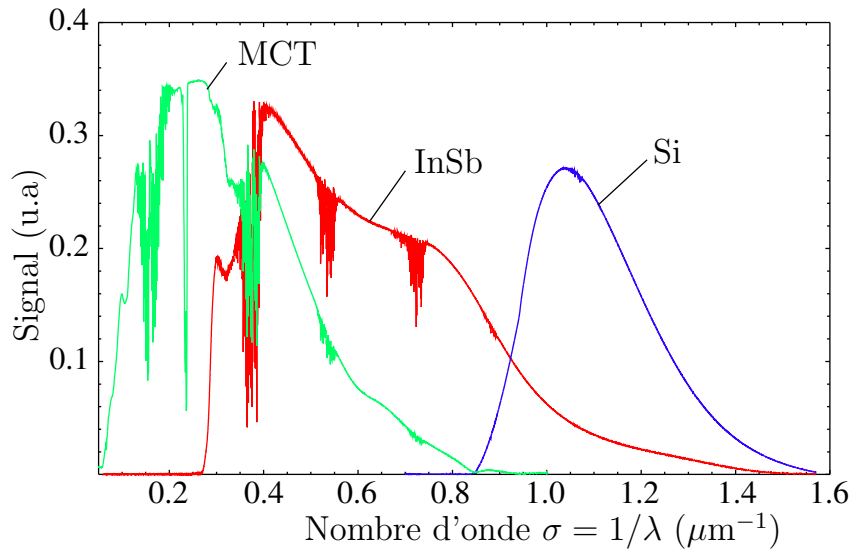


FIG. 3.12 – Réponse expérimentale des détecteurs en fonction du nombre d'onde $\sigma = 1/\lambda$ (en μm^{-1}). En vert : détecteur MCT, séparatrice KBr, source globalar ; en rouge : détecteur InSb, séparatrice Quartz, source tungstène ; en bleu : détecteur Si, séparatrice Quartz, source tungstène.

pour les deux polariseurs sur la Fig. 3.13. Pour le polariseur proche infrarouge, T_1 chute brutalement en dessous de $\sigma = 0.4 \mu\text{m}^{-1}$, tandis que $T_1 > 83\%$ dans la gamme spectrale $\sigma = 0.08 - 0.8 \mu\text{m}^{-1}$ pour le polariseur moyen infrarouge.

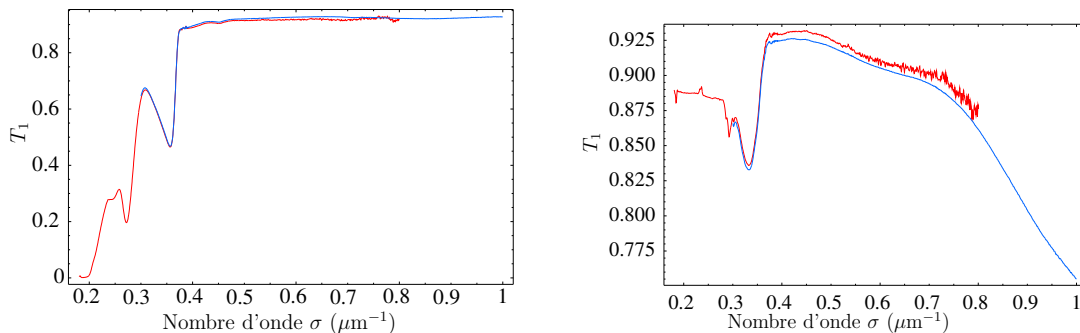


FIG. 3.13 – Transmission de la lumière dans l'axe passant du polariseur T_1 pour les polariseurs fonctionnant dans le proche et moyen infrarouge (resp. à gauche et à droite). Les courbes en rouge correspondent à une mesure avec le détecteur MCT, et celles en bleu sont obtenues avec le détecteur InSb.

Les degrés de polarisation et les taux d'extinction des deux polariseurs sont donnés sur la Fig. 3.14. On a un très bon degré de polarisation et taux d'extinction même au delà de leur domaine de travail.

3.3. Performances et Perspectives

Dans la pratique, les bonnes performances du polariseur moyen infrarouge nous permettent de l'utiliser dans tout le domaine spectral ($\sigma = 0.08 - 1.0 \mu\text{m}^{-1}$). Le polariseur proche infrarouge est employé uniquement sur la gamme $\sigma = 0.4 - 1.0 \mu\text{m}^{-1}$.

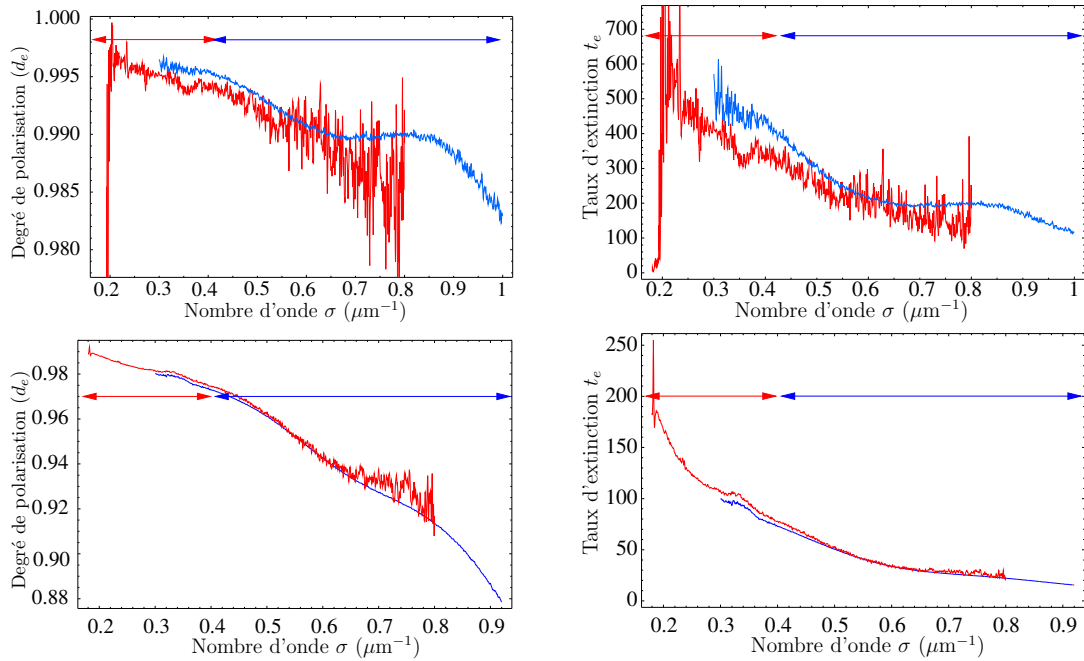


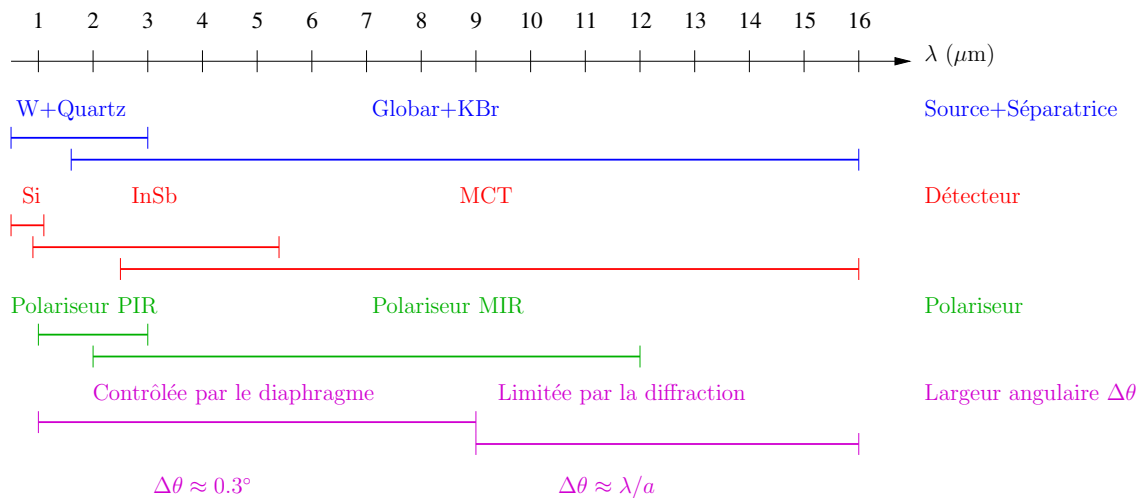
FIG. 3.14 – Degrés de polarisation et le taux d'extinction des polariseurs proche infrarouge (en haut) et moyen infrarouge (en bas). Les flèches bleue et rouge indiquent les deux domaines que nous avons l'habitude d'utiliser lors des mesures de réflexion et de transmission.

3.3.3 Bilan du banc de caractérisation

Voici une synthèse des performances et des possibilités du banc de caractérisation optique :

- Angle d’excitation : de 0 à 360° en transmission et de 3 à 180° en réflexion.
- Angle de détection : de 0 à 270°.
- Résolution angulaire : de $\pm 0.3^\circ$ à $\pm 1^\circ$.
- Diamètre du faisceau incident sur l’échantillon : 1.7 mm.
- Longueur d’onde : entre 0.5 et 12 μm en lumière polarisée linéairement
- Résolution spectrale : entre $2 \cdot 10^{-6}$ et $1 \cdot 10^{-3} \mu\text{m}^{-1}$.
- Rapport signal/bruit : de l’ordre 10^3 avec une résolution de $1 \cdot 10^{-3} \mu\text{m}^{-1}$ et un temps d’intégration de 4 mn par spectre.

Les domaines spectraux des différents éléments du montage sont rappelés ici :



3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté le banc de caractérisation optique développé pour l’étude des cristaux plasmoniques. Ce montage permet de mesurer la réflexion et la transmission sur un très large domaine spectral et pour quasiment tout angle d’excitation et de détection. Les imperfections du montage et les limitations intrinsèques au spectromètre à transformée de Fourier ont été pris en compte afin

3.4. Conclusion

de ne pas limiter fortement la résolution spectrale lors des mesures. Le banc de caractérisation s'avère être un outil performant pour l'étude de la réponse des réseaux métalliques. Les échantillons étudiés peuvent être éclairés avec une onde quasi-plane (l'angle de focalisation de la lumière atteint $\pm 0.3^\circ$) avec une excellente résolution spectrale (jusqu'à $2 \cdot 10^{-6} \mu\text{m}^{-1}$) et dans une large gamme spectrale ($1 - 10 \mu\text{m}$).

Chapitre 4

Cristaux plasmoniques 1D : contrôle de la propagation et de l'émission de lumière

Lors de la présentation des guides plasmoniques au chapitre 1, nous avons souligné l'absence de contrôle du couplage radiatif et de la sélectivité spectrale dans les structures classiquement étudiées. Pour palier à cela, nous avons proposé d'étudier la propagation des plasmons de surface le long d'un guide plasmonique nanostructuré représenté schématiquement sur la Fig. 4.1.

L'objet de ce chapitre est de présenter les propriétés originales des guides plasmoniques nanostructurés 1D. On peut déjà souligner le fait qu'à la différence des autres guides plasmoniques, la propagation des plasmons de surface se fait dans la direction perpendiculaire à la structuration. Nous allons montrer que ces guides apportent de nouvelles fonctionnalités au guidage à savoir la sélectivité spectrale et le contrôle du couplage radiatif. Ces propriétés résultent du couplage entre plasmons de surface se propageant sur deux interfaces différentes.

Pour mener cette étude, nous allons tout d'abord présenter les propriétés dispersives des plasmons de surface observables sur les diagrammes de dispersion. Basée sur un calcul électromagnétique complet, l'analyse de ces résultats expérimentaux révélera une modulation des pertes radiatives des plasmons de surface. Nous expliquerons l'origine de ce phénomène et ses conséquences pour la propagation des plasmons de surface dans les guides plasmoniques nanostructurés. L'influence des paramètres structurels (période, largeur des fentes) et optiques (indice des matériaux) des guides plasmoniques sur la propagation des plasmons de surface sera ensuite pré-

sentée. Nous discuterons à la fin de ce chapitre de l'apport des guides plasmoniques nanostructurés aux lasers à cascades quantiques, en étudiant particulièrement les propriétés de guidage (pertes, confinement) et d'extraction de la lumière.

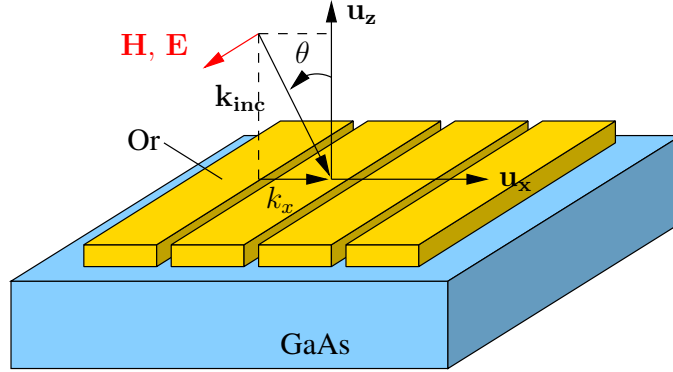


FIG. 4.1 – Réseau métallique éclairé par une onde plane faisant un angle θ par rapport à \mathbf{u}_z polarisée TM ($\mathbf{H} // \mathbf{u}_y$) ou TE ($\mathbf{E} // \mathbf{u}_y$).

4.1 Diagrammes de transmission résolus en angle et en fréquence

Cette section est consacrée à la caractérisation optique de réseaux métalliques 1D (Fig. 4.1). Dans un premier temps, nous détaillons l'influence de la polarisation et de l'angle d'incidence de la lumière dans les spectres de transmission. Ensuite, nous montrons comment l'acquisition du diagramme de transmission $T(\sigma, k_x)$ permet de mettre en évidence les relations de dispersion schématiquement décrites au chapitre 2. L'ouverture de bandes interdites entre plasmons de surface contra-propagatifs et la description des résonances de Fano observées dans les diagrammes de transmission seront détaillées à la fin de cette section.

4.1.1 Spectres de transmission d'un réseau métallique

Influence de la polarisation

Pour réaliser cette étude, nous avons fabriqué un film d'or d'épaisseur $t = 20$ nm déposé sur un substrat de GaAs et percé périodiquement ($d = 2.9 \mu\text{m}$) de fentes de largeur $a = 160$ nm. Le plan d'incidence est perpendiculaire aux fentes du réseau.

En polarisation TM (respectivement TE), le champ magnétique incident \mathbf{H} (respectivement le champ électrique incident \mathbf{E}) est partout parallèle aux fentes du réseau (Fig. 4.1).

Commençons par observer la transmission de la lumière à travers le cristal plasmonique pour un angle d'incidence $\theta = 0^\circ$ et en polarisations TE et TM dans la gamme spectrale $\lambda = 1 - 2.4 \mu\text{m}$. Les résultats sont représentés sur la Fig. 4.2. Ces mesures montrent un comportement différent en fonction des conditions d'excitation. Des **résonances** apparaissent clairement en polarisation TM, alors que la transmission décroît de façon monotone pour l'autre polarisation. Ces résonances sont liées à l'excitation de plasmons de surface comme nous le verrons plus loin. Nous avons représenté par des flèches sur la Fig. 4.2 les longueurs d'onde λ_R (définies p. 32) correspondant à l'apparition ou la disparition d'ondes diffractées par le réseau. Chacune des résonances observées en polarisation TM apparaît à une longueur d'onde légèrement supérieure à celle de λ_R .

On remarque par ailleurs que la transmission est loin d'être nulle ($0.3 < T < 0.45$). L'épaisseur du film est comparable à l'épaisseur de peau du métal (environ 25 nm) à ces longueurs d'onde. Dans la suite nous augmenterons l'opacité du film par une épaisseur de métal plus grande.

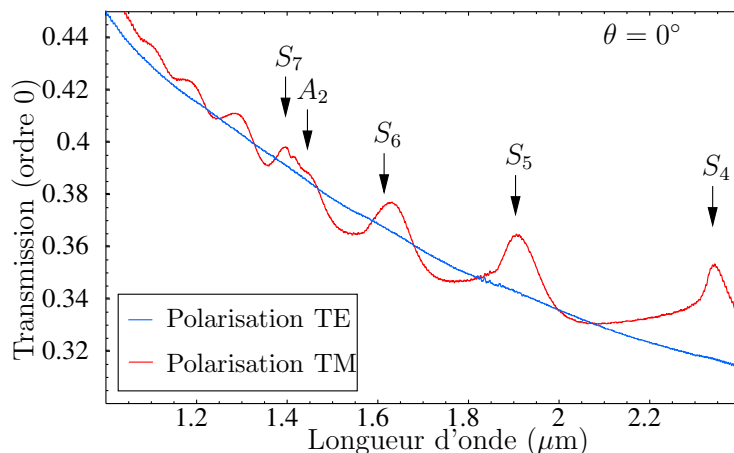


FIG. 4.2 – Spectres de transmission mesurés en polarisation TE (en bleu) et TM (en rouge) sur un réseau en or déposé sur un substrat de GaAs de période $d = 2.9 \mu\text{m}$, de largeur de fentes $a = 160 \text{ nm}$ et d'épaisseur de métal $t = 20 \text{ nm}$.

Influence de l'angle d'incidence de la lumière

Il est intéressant de suivre la manière dont les pics observés en polarisation TM évoluent lorsque l'on change l'angle d'incidence θ . La suite de cette étude est réalisée sur un réseau en or de période $d = 2.9 \mu\text{m}$, de largeur de fentes $a = 160 \text{ nm}$ et

d'épaisseur $t = 40$ nm (2 fois l'épaisseur précédente). Deux mesures de transmission sont présentées sur la Fig. 4.3 pour deux angles d'incidence de la lumière ($\theta = 3^\circ$ et $\theta = 5^\circ$). Les résonances observées sur les deux spectres de transmission se décalent lorsque l'on change θ . Cependant, on note que ce décalage spectral ne s'opère pas de la même manière pour toutes les résonances. Par exemple les résonances A et B s'éloignent l'une de l'autre entre les deux mesures. Pour interpréter ces mesures, nous allons donc procéder à une étude systématique de la transmission en fonction de l'angle.

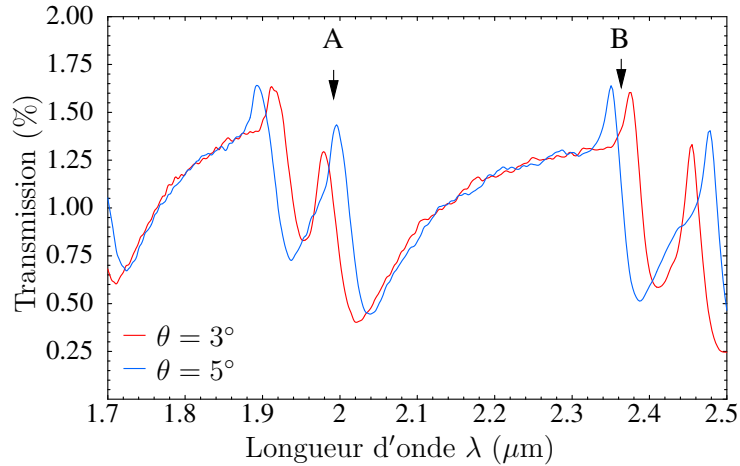


FIG. 4.3 – Spectres de transmission mesurés en polarisation TM sur un réseau métallique de période $d = 2.9 \mu\text{m}$, de largeur de fentes $a = 160$ nm et d'épaisseur de métal $t = 40$ nm pour des angles d'incidence $\theta = 3^\circ$ (en rouge) et $\theta = 5^\circ$ (en bleu).

4.1.2 Diagramme de transmission $T(\sigma, k_x)$

L'étude des diagrammes de dispersion d'un guide plasmonique nanostructuré en or de période $d = 2.9 \mu\text{m}$, de largeur de fentes $a = 160$ nm et d'épaisseur $t = 40$ nm et déposé sur un substrat de GaAs est présentée ici. Nous avons mesuré l'intensité transmise spéculairement par ce cristal plasmonique 1D pour des incidences comprises entre $\theta = 0^\circ$ et 45° par pas de 0.1° dans la gamme spectrale $\lambda = 1 - 5.4 \mu\text{m}$ avec une résolution spectrale de $\Delta\sigma = 10 \text{ cm}^{-1}$. L'angle de convergence de la lumière est réglé à $\Delta\theta = 0.3^\circ$ (cf. chapitre 3, p. 68). La surface totale du réseau est $2 \times 2 \text{ mm}^2$. Les résultats sont présentés sur la Fig. 4.4.

Pour les mesures des spectres de transmission, nous avons volontairement fixé la résolution spectrale à $\Delta\sigma = 10 \text{ cm}^{-1}$. En effet, le substrat de GaAs constitue une cavité Fabry-Pérot d'épaisseur $350 \mu\text{m}$ et d'indice $n \approx 3.4$. Il provoque donc des oscillations spectrales de période 4.3 cm^{-1} qui apparaissent dans les spectres de

transmission mesurés. Nous filtrons ces oscillations en fixant la résolution spectrale de l'interféromètre à $\Delta\sigma = 10 \text{ cm}^{-1}$ tout en conservant une résolution suffisante pour l'étude qui sera présentée dans ce chapitre. De plus, en abaissant la résolution spectrale, on diminue l'amplitude du déplacement du miroir mobile dans le spectromètre IRTF (chapitre 3, § 3.2.2). Comme le mouvement du miroir est à vitesse constante, on augmente le rapport signal/bruit en conservant le même temps d'acquisition pour chaque spectre.

La transmission mesurée est représentée en niveaux de gris en fonction du nombre d'onde $\sigma = 1/\lambda$ et de la composante du vecteur d'onde parallèle à la surface $k_x = 2\pi\sigma \sin\theta$. On observe clairement des bandes sombres et claires, qui correspondent respectivement à des minima et maxima de transmission. Ces mesures de transmission révèlent des résonances, dites de Fano, qui seront détaillées plus loin dans cette section. Nous allons montrer que ces résonances sont associées à différents modes de plasmons de surface, et que les diagrammes de transmission révèlent les relations de dispersion de ces modes de surface. On peut d'ores et déjà remarquer dans le diagramme de transmission de la Fig. 4.4 deux familles de résonances dont les courbes de dispersion présentent des pentes différentes.

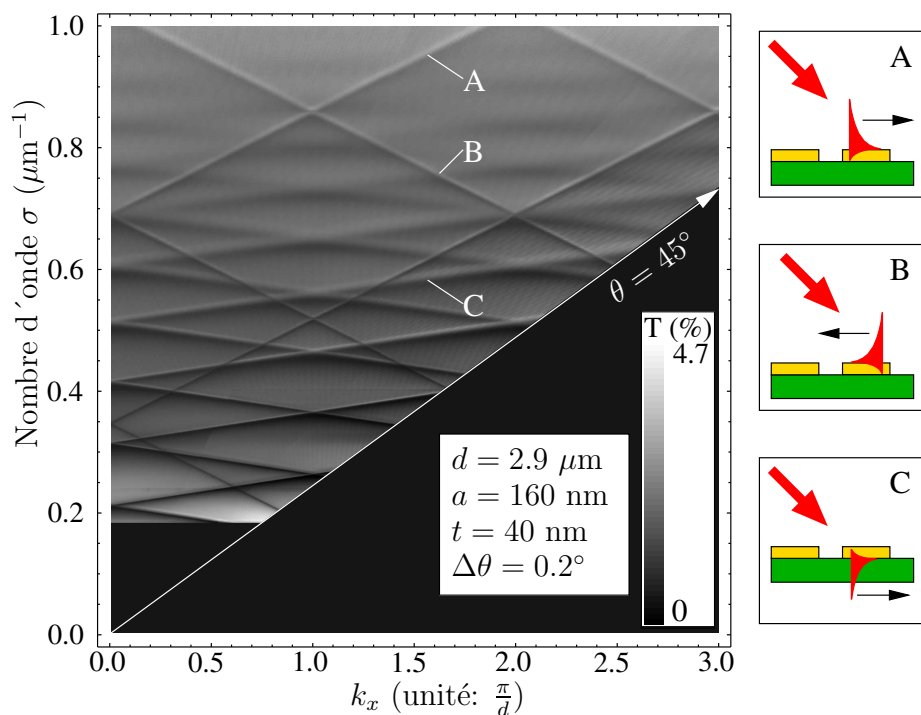


FIG. 4.4 – Mesure du diagramme de transmission en fonction du nombre d'onde $\sigma = 1/\lambda$ et de la composante du vecteur d'onde parallèle à la surface du réseau $k_x = 2\pi\sigma \sin\theta$. Une vue schématique de l'excitation par une onde plane des plasmons de surface se propageant à l'interface air/or (A et B) et GaAs/or (C) du réseau, est présentée pour différents points du diagramme de transmission.

Nous avons constaté sur la Fig. 4.2 que les résonances apparaissent uniquement en polarisation TM. Elles sont directement liées à l'excitation de plasmons de surface se propageant sur l'une des interfaces du réseau métallique. Commençons par une description schématique de ces résonances. Comme nous l'avons expliqué au § 2.1.2 du chapitre 2, les résonances de plasmon de surface sont excitées par une onde diffractée d'ordre p , lorsque $|k_{spp}| \approx |k_x^{(p)}|$, avec $k_x^{(p)} = 2\pi\sigma \sin\theta + p\frac{2\pi}{d}$. Aux grandes longueurs d'onde, la fonction diélectrique du métal est grande devant celle de l'air et du GaAs ($|\epsilon_m| \gg \epsilon_d$), et le vecteur d'onde du plasmon de surface dans la direction de propagation s'écrit $k_{spp} \approx 2\pi n\sigma$ avec $n = \sqrt{\epsilon_d}$. La relation de dispersion se simplifie en tenant compte des différentes approximations :

$$\sigma \approx \pm \left(\frac{k_x}{2\pi n} + \frac{p}{nd} \right) \quad (4.1)$$

$$= \pm \frac{1}{2nd} \left(\frac{k_x d}{\pi} + 2p \right). \quad (4.2)$$

L'éq. 4.2 montre que la pente des courbes de dispersion est inversement proportionnelle à l'indice (n) du diélectrique. Dans le diagramme de transmission de la Fig. 4.4, les deux familles de résonances dont les courbes de dispersion présentent des pentes différentes sont associées aux plasmons de surface se propageant à l'interface air/or d'une part (forte inclinaison ($n = 1$), A et B sur la Fig. 4.4), et à l'interface GaAs/or d'autre part (faible inclinaison ($n \approx 3.5$), C sur la Fig. 4.4). Ces deux types de plasmons de surface se propagent avec des vitesses de groupe v_g différentes. Par ailleurs, le signe de la pente des courbes de dispersion nous renseigne sur la direction de propagation des plasmons de surface se propageant à l'interface du réseau. Quand il est positif, il correspond à des plasmons se propageant dans le même sens que l'onde incidente (A et C sur la Fig. 4.4). Dans la suite, on adoptera la nomenclature suivante pour décrire les différents modes de surface du réseau : un plasmon de surface excité à l'interface air/métal (resp. substrat/métal) par un ordre diffracté p est noté A_p (resp. S_p).

On observe sur la Fig. 4.4 un élargissement des résonances aux courtes longueurs d'onde. Il est lié à une augmentation de l'absorption du métal avec σ .

Nous avons comparé la mesure au calcul de la transmission basé sur la méthode modale et le formalisme de la matrice S décrits au chapitre 2. Les paramètres géométriques du réseaux (d, a, t) sont identiques à ceux de la structure réalisée. La permittivité de l'or est donnée par un modèle de Drude :

$$\epsilon_m = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma} \quad (4.3)$$

avec $\omega_p = 1.29 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$ et $\gamma = 1.14 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$, ce qui constitue une bonne approximation des valeurs expérimentales de la permittivité de l'or dans la gamme spectrale $\lambda = 1 - 5.4 \text{ }\mu\text{m}$ [82] (annexe B.1). La constante diélectrique du GaAs est donnée par [83, 84] :

$$n_{\text{GaAs}}(E_n) = \sqrt{7.1 + \frac{3.78}{1 - 0.180E_n^2} - \frac{1.97}{(30.08E_n)^2 - 1}} \quad (4.4)$$

où $E_n = hc/(e\lambda)$ est l'énergie d'un photon en eV (annexe B.2). Le calcul du diagramme de transmission est représenté sur la Fig. 4.5 avec les mêmes unités pour σ et k_x que sur la Fig. 4.4. L'accord avec les mesures semble très bon aussi bien pour la position des résonances des plasmons de surface que pour la valeur de la transmission. Néanmoins, nous verrons dans la suite qu'une analyse plus fine des mesures et des calculs fait apparaître un léger décalage spectral pour les plasmons de surface se propageant à l'interface GaAs/or.

Comme sur la Fig. 4.4, on note un élargissement des résonances aux faibles longueurs d'onde. Cependant les résonances sont plus larges dans les mesures. Cela traduit un mécanisme de pertes supplémentaire par rapport à la modélisation des réseaux (par exemple la diffusion aux interfaces métalliques par la rugosité du film).

Mesures de réflexion

Nous avons également mesuré la réflexion spéculaire pour des angles d'incidence compris entre $\theta = 2^\circ$ et 28° avec une largeur angulaire de $\Delta\theta = \pm 0.7^\circ$. Les spectres sont mesurés uniquement avec le détecteur InSb sur la plage de longueur d'onde $\lambda = 1 - 2.5 \text{ }\mu\text{m}$. Le résultat des mesures est montré sur la Fig. 4.6 en fonction de k_x et σ . Un spectre de réflexion mesuré à $\theta = 5^\circ$ est représenté dans l'encadré de la même figure.

Nous avons vérifié par le calcul que les résonances de plasmons de surface se manifestent également par la présence d'un minimum et d'un maximum dans les spectres de réflexion. La comparaison avec les spectres de transmission calculés montre que la fréquence du maximum de transmission est proche de celle du minimum de réflexion.

Dans le diagramme de réflexion mesuré, on observe essentiellement des maxima (bandes claires). Nous avons constaté que les largeurs de résonance des plasmons de surface air/métal sont très fines dans le calcul des spectres de réflexion ($\Delta\sigma \approx 2.5 \times 10^{-3} \text{ }\mu\text{m}^{-1}$). Compte-tenu des conditions expérimentales (largeur angulaire $\Delta\theta = \pm 0.7^\circ$ et résolution spectrale $\Delta\sigma = 10^{-3} \text{ }\mu\text{m}^{-1}$), on peut alors s'attendre à une disparition des minima de réflexion des résonances air/métal dans les

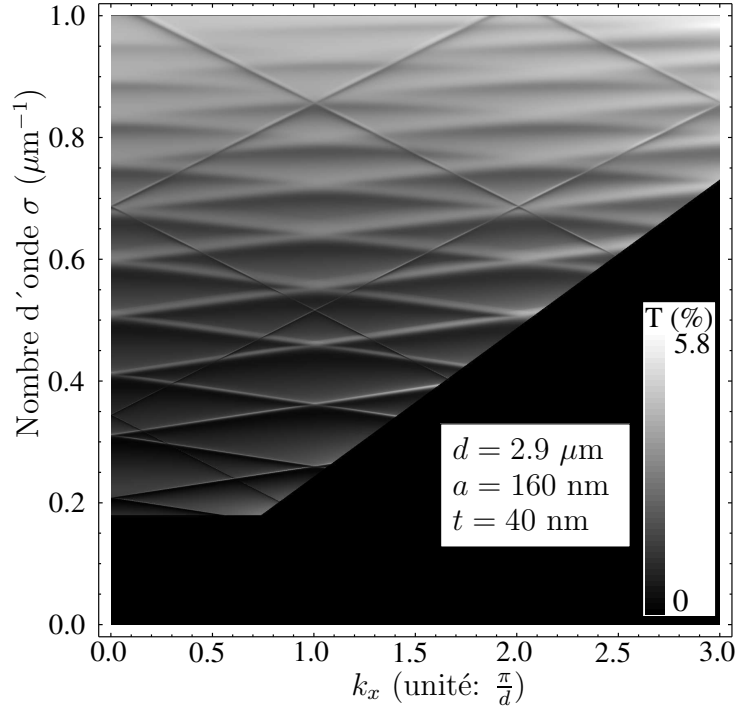


FIG. 4.5 – Calcul du diagramme de transmission en fonction du nombre d'onde $\sigma = 1/\lambda$ et de la composante du vecteur d'onde parallèle à la surface du réseau $k_x = 2\pi\sigma \sin \theta$.

spectres de réflexion mesurés. Cependant, nous ne sommes en pas actuellement en mesure d'expliquer pourquoi, on ne peut pas détecter les minima des résonances de plasmons de surface substrat/métal. Il est donc nécessaire de compléter ces mesures de réflexion avec une meilleure résolution angulaire et spectrale.

On vérifie par ailleurs que le diagramme de réflexion met en évidence aussi bien les relations de dispersion des modes se propageant à l'interface air/or que GaAs/or.

Bandes interdites aux bords et au centre de la zone de Brillouin

Le couplage entre deux ondes de surface se propageant sur la même interface est connu pour donner lieu à une bande interdite plasmonique dans les diagrammes de dispersion [85, 86, 87]. Ce phénomène se produit à l'intersection de courbes de dispersion de deux plasmons de surface se propageant dans des directions opposées et excités avec le même vecteur d'onde incident k_x .

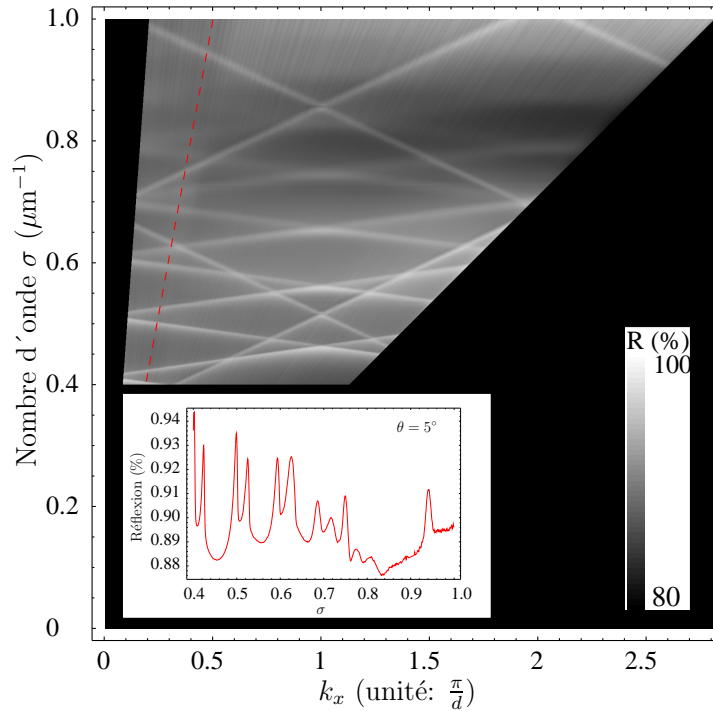


FIG. 4.6 – Mesure du diagramme de réflexion de la lumière en fonction du nombre d'onde σ et du vecteur d'onde k_x sur un réseau en or déposé sur un substrat de GaAs ($d = 2.9 \mu\text{m}$, $a = 160 \text{ nm}$ et $t = 40 \text{ nm}$). Encadré : spectre de réflexion à $\theta = 5^\circ$.

Soient deux plasmons de surface se propageant dans des directions de propagation différentes. Les relations de dispersion de ces modes s'écrivent de manière approchée :

$$\begin{cases} (2\pi n\sigma) = k_x + p_1 K_x \\ (2\pi n\sigma) = -k_x - p_2 K_x \end{cases} \quad (4.5)$$

où $K_x = \frac{2\pi}{d}$ est le vecteur réciproque du réseau et p_1, p_2 des entiers. Les solutions (k_x, σ) de ce système d'équations donnent les positions des couplages entre deux plasmons de surface dans les diagrammes de dispersion :

$$(k_x, \sigma) = \left(-(p_1 + p_2) \frac{\pi}{d}, (p_1 - p_2) \frac{1}{2nd} \right). \quad (4.6)$$

Considérons le cas du couplage des modes A_{-1} et A_{+1} au centre de la zone de Brillouin ($k_x = 0$). Les deux modes sont excités simultanément par l'onde incidente et se propagent dans les directions de propagation $k_{spp} = -K_x$ pour A_{-1} et $k_{spp} = K_x$

pour A_{+1} . Leur champ magnétique s'écrit le long de l'interface air/or :

$$\mathbf{H}_{+1} = H_0 \text{Re}[\exp(i(K_x x - \omega t)) \mathbf{u}_y] \quad (4.7)$$

$$\mathbf{H}_{-1} = H_0 \text{Re}[\exp(i(-K_x x - \omega t)) \mathbf{u}_y]. \quad (4.8)$$

Ces deux modes se couplent pour donner lieu à deux modes $\mathbf{H}_s = \mathbf{H}_{+1} + \mathbf{H}_{-1}$ et $\mathbf{H}_a = \mathbf{H}_{+1} - \mathbf{H}_{-1}$. L'intensité du champ magnétique $|\mathbf{H}|^2$ s'écrit pour ces deux modes :

$$|\mathbf{H}_s|^2 = I_0(1 + \cos(2K_x x)) \mathbf{u}_y \quad (4.9)$$

$$|\mathbf{H}_a|^2 = I_0(1 - \cos(2K_x x)) \mathbf{u}_y \quad (4.10)$$

Le champ magnétique \mathbf{H}_s est une onde stationnaire symétrique par rapport à l'axe y du réseau tandis que le champ magnétique \mathbf{H}_a est antisymétrique (Fig. 4.7). Ces deux champs ne peuvent pas être excités simultanément car ils présentent des symétries différentes. Les fréquences propres sont décalées l'une de l'autre ce qui donne lieu à une bande interdite.

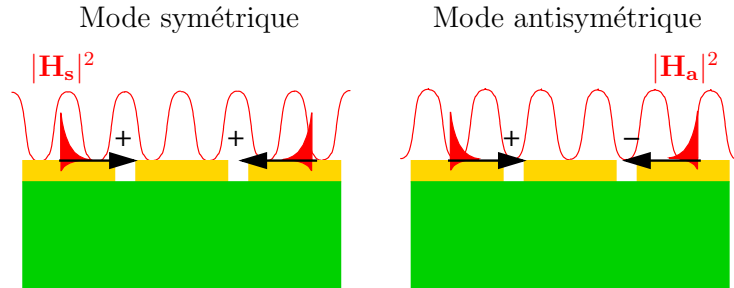


FIG. 4.7 – Profil de l'intensité du champ magnétique des modes couplés symétrique et antisymétrique. Les flèches donnent la direction de propagation des plasmons de surface impliqués dans le mode couplé et “+/-” indiquent le signe utilisé dans la combinaison linéaire de ces modes.

Un tel phénomène est visible dans les mesures de transmission de la Fig. 4.4 à l'intersection des modes se propageant sur la même interface. Les Figs. 4.8 sont des vues de détails des mesures (a) et calculs (b) de transmission autour du croisement des relations de dispersion des modes A_{+1} et A_{-2} . On remarque dans les mesures que même des fentes très étroites ($a/d = 5.5\%$) induisent une bande interdite extrêmement fine ($\delta\sigma/\sigma = 1.6\%$). Dans la Fig. 4.8, le mode symétrique est ici celui de plus haute énergie. Il présente un maximum de transmission en $k_x = \pi/d$ aussi bien dans les mesures que le calcul.

La vue de détail sur les spectres calculés ne permet pas de mettre ce phénomène en évidence. Nous avons calculé les modes A_{-2} et A_{+1} pour $k_x = \pi/d$ (notés respectivement σ_{-2} et σ_{+1}). La recherche des modes met bien en évidence la formation d'une bande interdite de largeur $\delta\sigma = Re(\sigma_{-2}) - Re(\sigma_{+1}) = 7.5 \times 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$. Or dans les spectres de transmission, la largeur des résonances à mi-hauteur est donnée par $2Im(\sigma)$ [80]. Pour le mode A_{-2} , la largeur de résonance attendue pour les spectres de transmission est $2Im(\sigma) = 2 \times 10^{-3} \mu\text{m}^{-1}$, *i.e.* bien supérieure à l'écart spectral entre les deux modes. C'est probablement la raison pour laquelle la bande interdite n'est pas visible sur les résultats du calcul. Il est cependant étonnant de constater sur les résultats expérimentaux l'apparition de la bande interdite malgré l'élargissement des résonances.

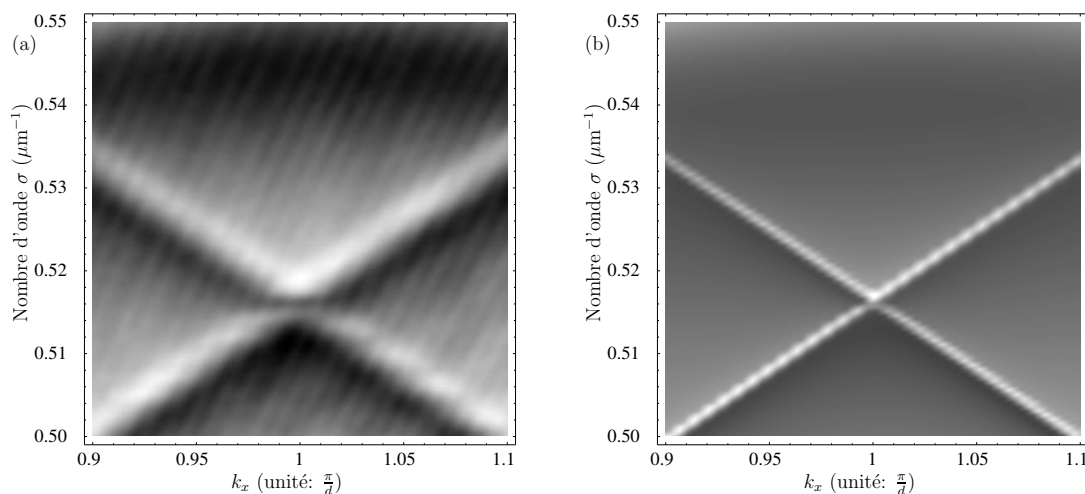


FIG. 4.8 – Diagrammes de transmission mesuré (a) et calculé (b) issues des Figs. 4.4 et 4.5 au croisement des courbes de dispersion des modes A_{+1} et A_{-2} .

Les bandes interdites entre les modes de plasmons de surface se propageant à l'interface GaAs/or ne sont pas visibles car les résonances de ces modes sont trop larges.

Les résonances de Fano

Dans le diagramme présenté sur la Fig. 4.4, l'excitation d'un plasmon de surface se traduit par une résonance de Fano, *i.e.* un maximum proche d'un minimum de transmission. L'étude de la réponse d'un système possédant un mode résonant fait apparaître ce phénomène. Il résulte d'un couplage entre deux canaux de transmission du système : un *canal direct* et un *canal résonant*. Dans le cas des réseaux métalliques schématiquement représentés sur la Fig. 4.9, le canal direct fait référence à la transmission de la lumière à travers le réseau sans interaction avec le mode de

plasmon de surface. La transmission directe dépend très peu des conditions d'excitation. Dans le cas du canal résonant, la transmission résulte aussi de l'excitation d'un plasmon de surface par le réseau, qui se couple ensuite aux ondes radiatives. Ces deux modes de transmission interfèrent entre eux avec un déphasage variable. Le couplage donne lieu à la résonance de Fano.

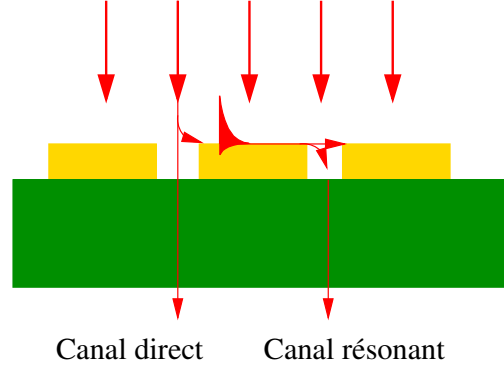


FIG. 4.9 – Résonance de Fano : la transmission à travers le système résulte de deux canaux de transmission, l'un direct et l'autre interagissant avec le mode résonant de la structure.

On peut trouver une description détaillée de ce type de résonance dans les références [88, 89]. En prenant en considération les interférences entre les canaux direct et résonant, on peut construire un modèle simple et intuitif pour expliquer l'allure des résonances. L'amplitude transmise (A_t) par le système est la superposition de l'amplitude du canal direct (A_d) et du canal résonant (A_r). Dans notre cas, le mode résonant est décrit par un pôle du coefficient de transmission et de réflexion du réseau. L'amplitude A_r se modélise alors avec une fonction Lorentzienne de pôle complexe ω_p . On a donc pour l'amplitude transmise :

$$A_t = A_d + A_{0r} \left(\frac{-Im(\omega_p)}{\omega - \omega_p} \right) \quad (4.11)$$

où A_{0r} est l'amplitude de transmission du canal résonant. Après simplification, l'amplitude transmise s'exprime :

$$A_t = A_d \left(\frac{\omega - \omega_0}{\omega - \omega_p} \right) \quad (4.12)$$

avec $\omega_0 = \omega_p + \frac{A_{0r}}{A_d} Im(\omega_p)$. On retrouve l'expression générale d'une résonance de Fano avec un pôle et un zéro proche l'un de l'autre puisque $|Im(\omega_p)| \ll \omega$. Cette

propriété a été démontrée par Maystre dans le cas particulier des réseaux métalliques sans absorption [90].

La Fig. 4.10 montre un calcul de la transmission au voisinage d'une résonance de Fano d'un plasmon de surface se propageant à l'interface air/or. Nous avons calculé l'intensité du champ magnétique $|\mathbf{H}|^2$ pour 2 fréquences différentes (A et B). On remarque que l'intensité transmise par le réseau est corrélée à une modification de l'intensité du champ au voisinage du métal.

Lorsque le champ magnétique est nul au dessus des fentes (flèche A sur la Fig. 4.10), alors il n'y a pas de couplage des ondes se propageant coté air avec celles situées sous le réseau. C'est ce que nous appellerons la condition de champ nul. On a alors un minimum de transmission. Au contraire, au maximum de la transmission l'intensité du champ est non-nulle au dessus des fentes (flèche B sur la Fig. 4.10), le couplage radiatif du plasmon de surface air/métal avec les ondes sous le réseau augmente. Ce comportement est identique pour les résonances des plasmons de surface se propageant à l'interface substrat/métal.

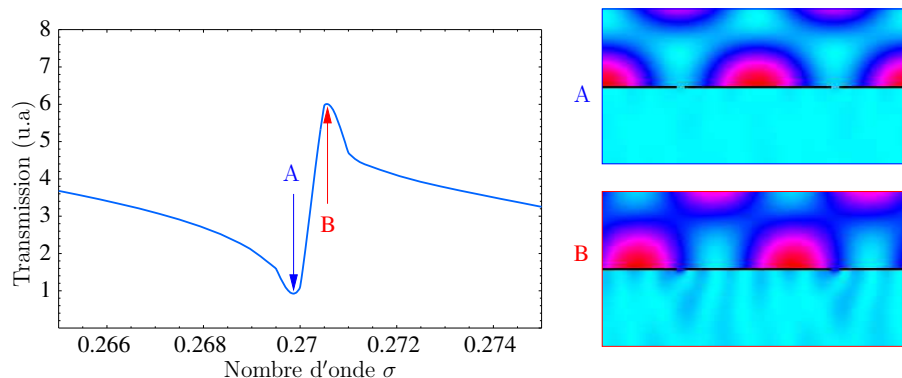


FIG. 4.10 – Résonance de Fano : la transmission présente un minimum (A) et un maximum (B) de transmission très proches l'un de l'autre. Les champs magnétiques $|\mathbf{H}|^2$ ont été calculés pour ces deux fréquences particulières. Les zones rouges représentent les régions d'intensité maximale.

4.2 Modulations des pertes

La transmission de la lumière est une signature des pertes radiatives des plasmons de surface se propageant sur le réseau métallique. Dans la suite nous montrerons comment l'analyse des mesures de transmission permet de mettre en évidence une modulation des pertes radiatives des plasmons de surface et de la longueur de propagation Λ . Deux régimes de propagation sont différenciés pour les guides plasmoniques nanostructurés. L'influence des différents paramètres du réseau est étudiée,

en particulier l'indice du substrat. Enfin nous montrons que ces propriétés peuvent être utilisées pour contrôler le régime de propagation des plasmons de surface.

4.2.1 Mises en évidence expérimentale et numérique

Nous nous intéressons au couplage entre les plasmons de surface se propageant de part et d'autre du réseau métallique. Pour illustrer ce phénomène nous nous focalisons sur l'interaction du mode de plasmon de surface A_{-2} avec les modes de surface de l'interface GaAs/or ($S_{+5}, S_{-6}, S_{+6}, S_{-7}$). Une vue de détails de la transmission mesurée et calculée est présentée sur la Fig. 4.11. La bande A_{-2} correspondant à un mode de surface se propageant à l'interface air/or croise les bandes $S_{+5}, S_{-6}, S_{+6}, S_{-7}$ correspondant à l'excitation de modes de surface or/GaAs. On remarque que la transmission le long de la bande brillante du mode A_{-2} présente des modulations d'intensité aussi bien pour la mesure que le calcul. Cette modulation est directement liée au croisement des relations de dispersion des différents plasmons de surface.

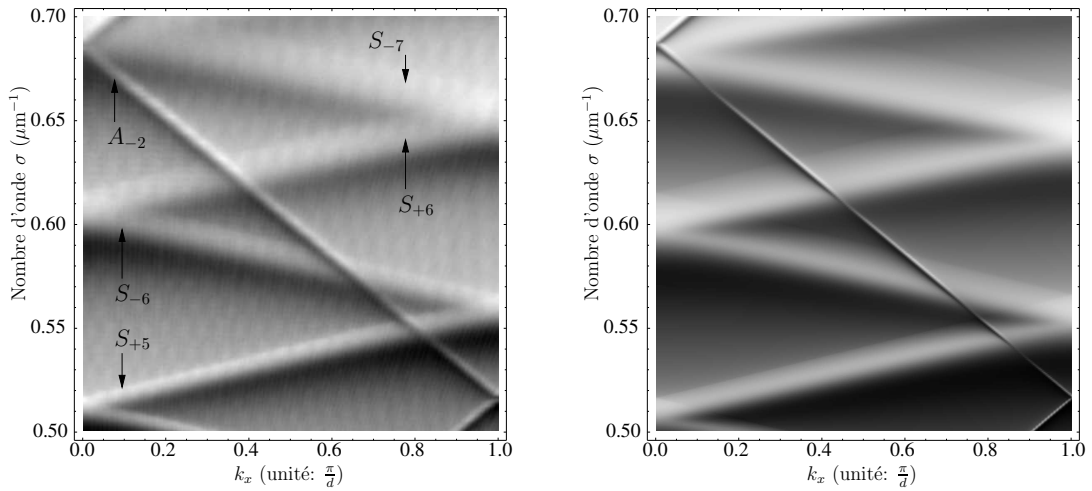


FIG. 4.11 – Mesure (à gauche) et calcul (à droite) du diagramme de transmission (vue de détail des Figs. 4.4 et 4.5). Ces figures font apparaître les modes de plasmons de surface A_{-2} et $S_{+5}, S_{-6}, S_{+6}, S_{-7}$.

Plus précisément, on observe une augmentation de la transmission au croisement des bandes brillantes des modes A_{-2} et $S_{+5}, S_{-6}, S_{+6}, S_{-7}$ (flèches rouges sur la Fig. 4.12). Dans ce cas, il existe des plasmons de surface sur chaque interface du réseau métallique. Or au maximum de transmission, le champ magnétique est non nul dans les fentes du réseau (B sur la Fig. 4.10). Les résonances de plasmons de surface qui existent de part et d'autre du réseau sont donc couplées par les fentes du réseau métallique. Cette interaction augmente alors le couplage radiatif des deux modes.

Au contraire, la transmission diminue lorsque la bande brillante du mode A_{-2} croise les bandes sombres des modes $S_{+5}, S_{-6}, S_{+6}, S_{-7}$ (flèches bleues sur la Fig. 4.12). Or le minimum de transmission lié au mode de plasmon de surface se propageant à l'interface substrat/métal correspond à une condition de champ nul au niveau des fentes du réseau (A sur la Fig. 4.10). Le couplage radiatif du mode A_{-2} avec les ondes propagatives dans le substrat est alors réduit.

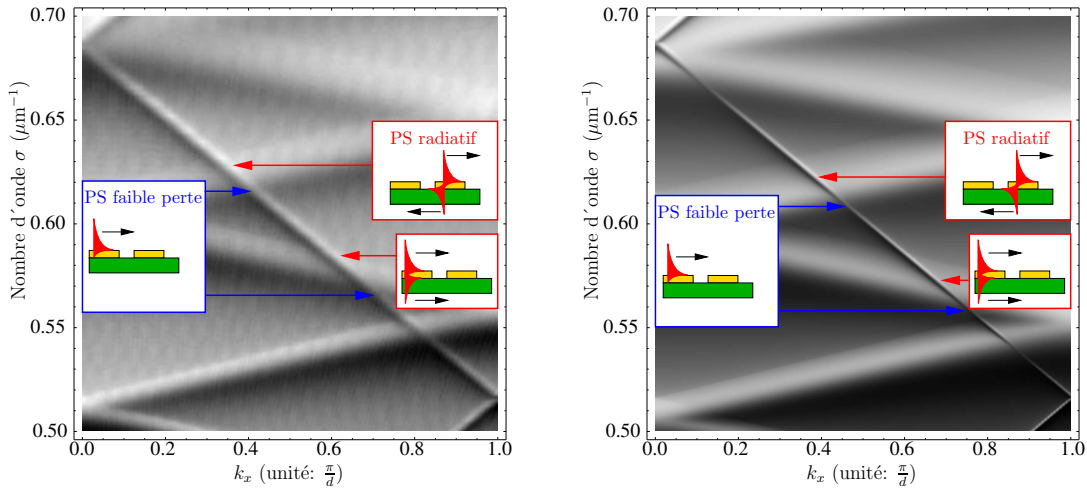


FIG. 4.12 – Mesure (à gauche) et calcul (à droite) du diagramme de transmission. L'interaction des modes se propageant le long du réseau métallique permet de modifier les propriétés des plasmons de surface. Deux régimes de propagation sont mis en évidence : un régime faible perte (flèches bleues) et un régime radiatif (flèches rouges).

Nous avons extrait les valeurs de l'intensité de transmission le long de la bande brillante du mode A_{-2} pour la mesure et le calcul (recherche pour chaque angle d'incidence du maximum de transmission). Leurs positions dans le diagramme de transmission sont représentées sur la Fig. 4.13(a). Il n'a pas été possible d'extraire l'ensemble de maxima de transmission le long du mode A_{-2} , en particulier au croisement des modes air/or et GaAs/or. Lorsque le couplage radiatif du mode A_{-2} est exalté, la résonance A_{-2} disparaît dans la résonance des plasmons de surface GaAs/or.

Nous avons reporté l'inverse de la transmission $1/T(\sigma)$ dans la Fig. 4.13(b). Les modulations de la transmission apparaissent très clairement. Il existe cependant un décalage spectral entre les modulations de $1/T$ mesuré et calculé. Cette différence entre les mesures et les calculs est directement liée à un changement d'indice optique sous le métal dans la structure réelle, car les plasmons de surface sont très sensibles à leur environnement proche. Par exemple, une simple oxydation superficielle du substrat pourrait expliquer ce décalage, ou bien la présence d'air (petites cavités)

entre le métal et le substrat. En effet, comme l'or est déposé sans couche d'accroche, il est possible qu'il y ait par endroit des poches de vide à l'interface GaAs/or. Nous avons vérifié par le calcul qu'une simple couche d'air de 0.4 nm d'épaisseur et d'indice $n = 1$ induit le même décalage que dans les mesures.

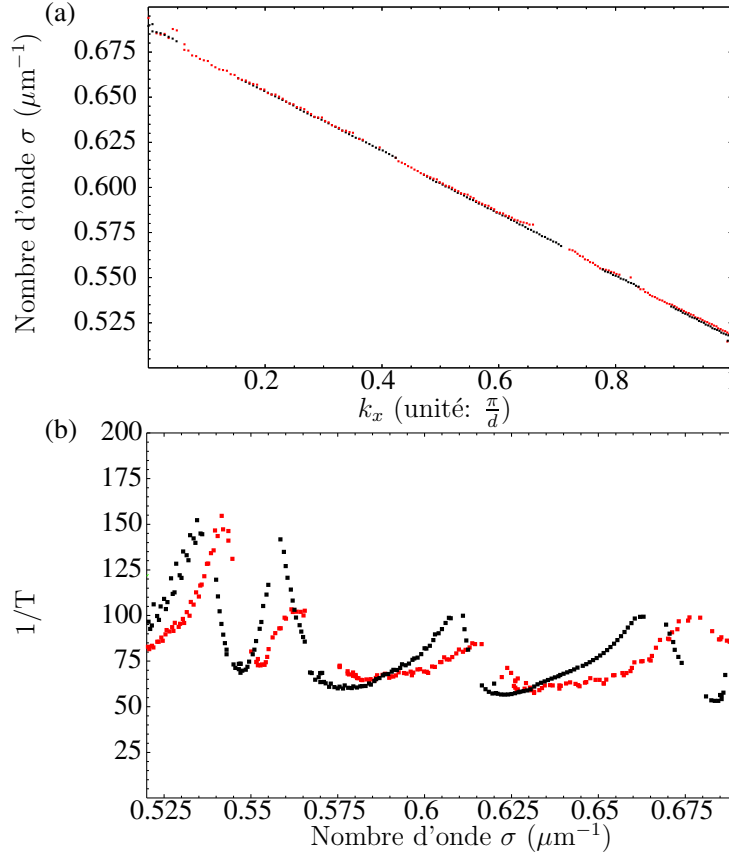


FIG. 4.13 – (a) Maxima de transmission relevés le long de la bande brillante du mode A_{-2} pour les mesures (points rouges) et le calcul (points noirs). (b) Inverse de la transmission $1/T(\sigma)$ extraite des diagrammes de transmission mesurés (points rouges) et calculés (points noirs).

Ce décalage peut être pris en compte dans la modélisation en modifiant l'indice du substrat et en introduisant un indice effectif n_{eff} pour le GaAs. L'optimisation de ce paramètre donne $n_{eff} = 0.985 \times n_{GaAs}$, où n_{GaAs} est toujours donné par l'éq. 4.4. L'inverse de la transmission $1/T(\sigma)$ obtenue pour les mesures et les calculs avec cet indice effectif est représenté sur la Fig. 4.14.

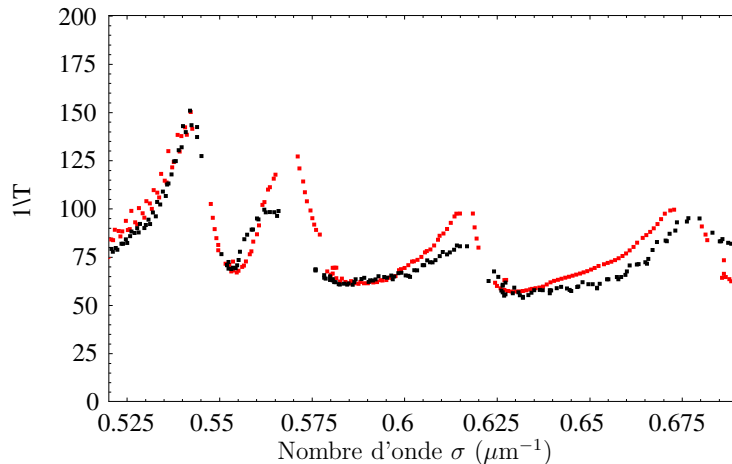


FIG. 4.14 – Inverse de la transmission $1/T(\sigma)$ extraite des diagrammes de transmission mesuré (points rouges) et calculé avec l'indice effectif $n_{eff} = 0.985 \times n_{GaAs}$ (points noirs).

Modulation de la longueur de propagation

Nous avons comparé ces résultats à la longueur de propagation Λ du mode A_{-2} . Le champ électromagnétique des plasmons de surface $\phi(\mathbf{r})$ s'exprime :

$$\phi(\mathbf{r}) = \phi_0 \exp[-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})] \quad (4.13)$$

où ϕ_0 est l'amplitude de l'onde. L'or est décrit avec le modèle de Drude (éq. 4.3) et le substrat par l'indice effectif $n_{eff} = 0.985 \times n_{GaAs}$. On calcule la fréquence complexe des modes de la structure $\omega = \omega' - i\frac{1}{2\tau}$, où ω' désigne la fréquence de la résonance et τ le temps de vie de la résonance. On a représenté la partie réelle du nombre d'onde du mode $\sigma(k_x) = \omega'(k_x)/(2\pi c)$ sur la Fig. 4.15(a), où c est la vitesse de la lumière dans l'air. On obtient un très bon accord entre les maxima extraits de la transmission et la fréquence du mode calculée pour la structure, en particulier la vitesse de groupe $v_g = \frac{\delta\omega'}{\delta k_x}$. On a pu vérifier ainsi que $v_g \approx c$. Par ailleurs, notons que nous n'observons pas de bande interdite dans la courbe de dispersion du mode A_{-2} comme c'est le cas en bordure et au centre d'une zone de Brillouin entre deux modes d'une même interface (§ 4.1.2, p. 82) [87].

La longueur de propagation du mode A_{-2} est alors obtenue grâce à la relation $\Lambda = v_g\tau$. Le résultat du calcul est reporté sur la Fig. 4.15(b). On remarque tout d'abord que $1/T$ et Λ présentent les mêmes modulations en fonction du nombre d'onde. On a un excellent accord sur la position des extrema de la transmission mesurée et la longueur de propagation. Les minima de transmission correspondent aux maxima de la longueur de propagation (flèches bleues) et les maxima de transmis-

sion correspondent aux longueurs de propagation les plus faibles (flèches rouges). Cette modulation de la longueur de propagation fait apparaître deux régimes de propagation dans les guides plasmoniques nanostructurés : un régime **radiatif** et un régime **faible perte** illustrés sur la Fig. 4.15(b).

Le régime radiatif correspond à la situation où deux plasmons de surface sont excités de part et d'autre du métal. L'interaction entre les deux modes augmente le couplage radiatif des ondes. Dans cette situation, le guide plasmonique nanostructuré permet aux plasmons de surface de se coupler plus efficacement aux ondes planes ce qui induit une longueur de propagation plus faible.

Dans le régime faible perte, le plasmon de surface se propageant à l'interface air/métal est très peu couplé aux ondes radiatives, et se propage avec moins de pertes le long du guide plasmonique nanostructuré.

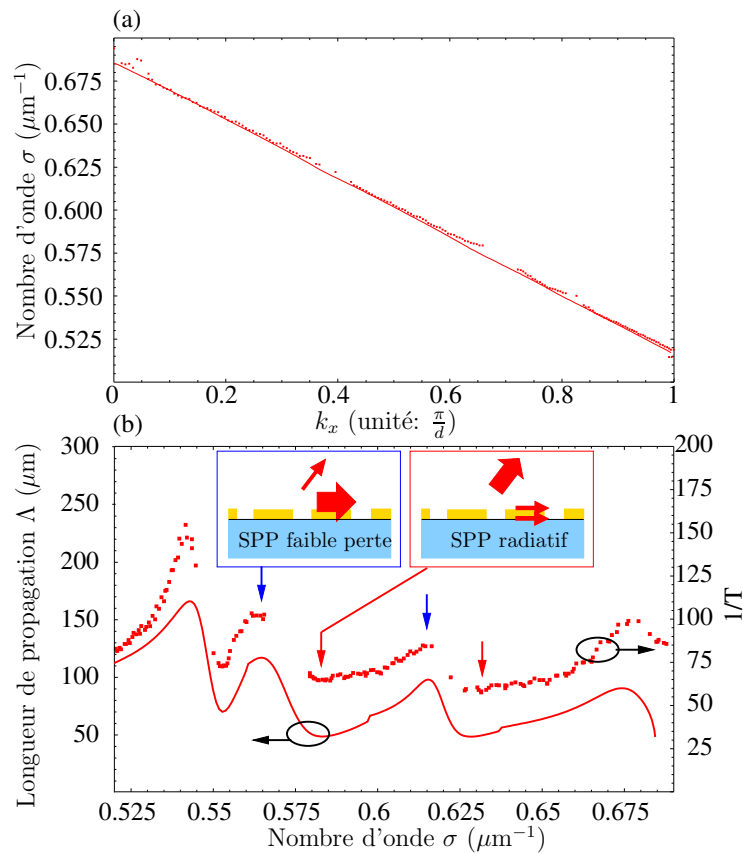


FIG. 4.15 – (a) Comparaison entre le calcul de la relation de dispersion du mode A_{-2} (ligne rouge) avec la mesure des maxima de transmission relevés le long de la branche du mode A_{-2} (points rouge). (b) Comparaison entre l'inverse de la transmission mesurée et de la longueur de propagation du mode A_{-2} . On distingue deux régimes de propagation pour le plasmon de surface se propageant le long des guides plasmoniques nanostructurés : un régime *radiatif* et un régime *faible perte*.

Les deux régimes de propagation résultent de l'interaction des modes de plasmons de surface se propageant de part et d'autre du réseau métallique. Ils apparaissent à des fréquences bien déterminées qui correspondent à l'intersection des courbes de dispersion des plasmons de surface sur les deux interfaces du réseau métallique. Contrairement aux guides plasmoniques classiques, la longueur de propagation ne varie pas de manière monotone. Il s'agit d'un moyen original pour privilégier la propagation des plasmons de surface à une certaine longueur d'onde et pour apporter une **sélectivité spectrale** aux guides plasmoniques.

Remarquons par ailleurs que les deux régimes de propagation existent quelque soit la direction de propagation des plasmons de surface air/métal et substrat/métal. Considérons les deux fréquences $\sigma = 0.554 \mu\text{m}$ et $\sigma = 0.585 \mu\text{m}$ qui correspondent à des régimes radiatifs. Dans le premier cas, les plasmons de surface se propageant de chaque côté du réseaux sont contra-propagatifs tandis que dans le deuxième cas, ils se propagent dans le même sens.

4.2.2 Nature des pertes

La modulation de la transmission confirme la modification des pertes radiatives dans les guides plasmoniques nanostructurés. De même, nous avons cherché à savoir comment évoluaient les pertes non-radiatives, *i.e.* les pertes par absorption dans le métal, en fonction des deux régimes de propagation. Pour cela, la fréquence complexe du mode A_{-2} est calculée pour une structure dont le métal ne comporte pas de pertes [91]. Nous avons donc annulé la partie imaginaire de la constante diélectrique du métal ($\text{Im}(\epsilon_m) = 0$). De ce calcul de mode, nous pouvons déduire la longueur de propagation radiative Λ_r , *i.e.* la longueur de propagation du plasmon de surface qui tient uniquement compte du couplage radiatif. Le résultat du calcul est représenté sur la Fig. 4.16. Les minima de Λ et Λ_r coïncident alors que les maxima ont des amplitudes différentes.

Si les minima coïncident, c'est que la longueur de propagation du régime radiatif est quasiment identique que le métal ait des pertes ou non. L'essentiel des pertes du plasmon de surface est donc lié au couplage radiatif du mode avec les ondes planes se propageant de part et d'autre du réseau. L'absorption joue alors un **rôle négligeable**. L'efficacité radiative Λ/Λ_r est proche de 1.

Au contraire, la différence entre les courbes rouges et vertes pour les longueurs de propagation les plus grandes met en évidence une forte diminution du couplage radiatif. Par exemple, l'efficacité radiative atteint dans le régime à faible perte $\Lambda/\Lambda_r = 0.25$ à $\sigma = 0.544 \mu\text{m}^{-1}$. Les pertes par absorption dans le métal jouent donc un rôle prépondérant dans le régime faible perte.

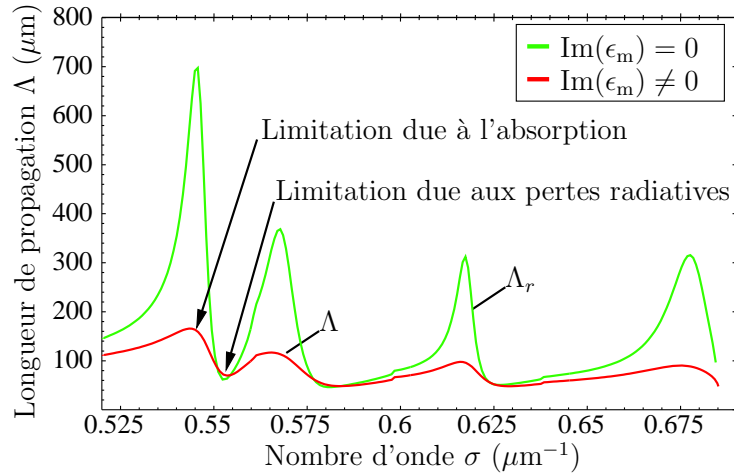


FIG. 4.16 – Longueur de propagation du mode A_{-2} calculée dans le cas d'un réseau métallique avec ou sans absorption dans le métal (respectivement Λ en rouge et Λ_r en vert).

4.2.3 À quel système faut-il se comparer ?

Dans cette partie, la longueur de propagation des modes d'un guide plasmonique nanostructuré est comparée à celle des modes d'interface des réseaux métalliques puis d'un film métallique non-structuré.

Mode d'interface

Pour cette étude nous avons calculé le mode d'interface A_{-2} d'un réseau en or de période $d = 2.9 \mu\text{m}$ et de largeur de fentes $a = 160 \text{ nm}$. Le résultat du calcul est donné sur la Fig. 4.17. La courbe de dispersion représentée sur la Fig. 4.17(a) reste inchangée par rapport à la courbe de dispersion A_{-2} du réseau métallique étudié jusqu'à présent. On remarque que la pente de la courbe de dispersion s'annule lorsque $k_x = 0$. Ce comportement est lié au couplage des modes A_{-2} et A_{+2} et à la formation d'une onde stationnaire comme nous l'avons expliqué p. 82.

Nous avons représenté sur la Fig. 4.17(b) le calcul de la longueur de propagation pour le mode d'interface (en bleu) et pour le réseau (en rouge). Pour le mode d'interface A_{-2} , on remarque un comportement très différent concernant les pertes : la longueur de propagation du mode d'interface évolue de manière monotone en fonction de σ . L'augmentation de la longueur de propagation observée lorsque $\sigma > 0.675 \mu\text{m}^{-1}$ est liée à l'annulation de la vitesse de groupe qui n'a pas été prise en compte dans le calcul de la longueur de propagation du plasmon de surface lorsque k_x tend vers 0.

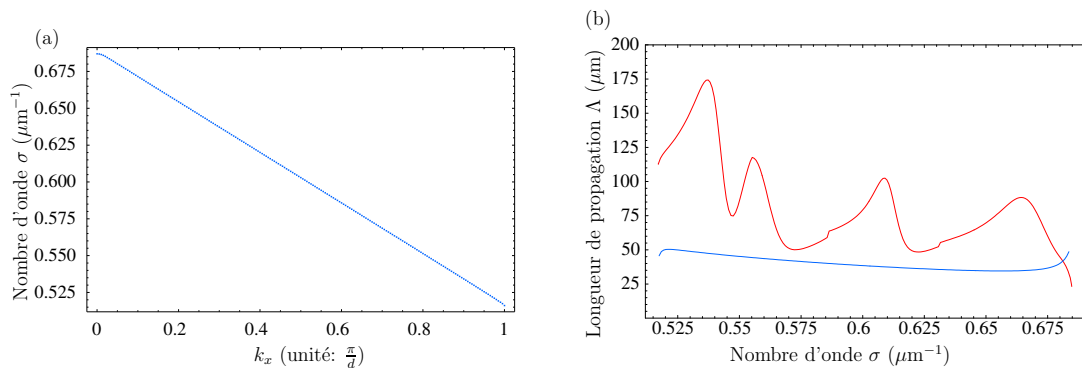


FIG. 4.17 – Calcul du mode d'interface (a) et de la longueur de propagation Λ (b) du plasmon de surface A_{-2} (en bleu). Le calcul de la longueur de propagation pour le mode de plasmon de surface du réseau métallique est représenté en rouge sur (b).

La longueur de propagation des plasmons de surface dans les régimes radiatifs montrent un comportement remarquable. On constate en effet que dans un guide plasmonique nanostructuré la **longueur de propagation est meilleure que pour celle d'un mode d'interface**. Ce résultat semble à première vue surprenant car les deux structures présentent un nombre de canaux radiatifs différents. Dans le cas des guides plasmoniques nanostructurés, les plasmons de surface peuvent se coupler aux ondes planes se propageant au dessus du réseau et dans le substrat. Dans le cas d'un mode d'interface, les pertes radiatives sont uniquement liées au couplage des plasmons de surface avec les ondes planes se propageant dans l'air. D'autre part, la longueur de propagation des guides plasmoniques nanostructurés peut être 4 fois plus grande que celle du mode d'interface dans les régimes faibles pertes.

Nous pouvons déduire de ces deux calculs que le mode d'interface n'est pas un outil de comparaison satisfaisant pour expliquer les modulations des pertes dans les guides plasmoniques nanostructurés. En effet, il ne prend pas en compte le couplage entre les plasmons de surface air/or et GaAs/or. Nous verrons au § 4.2.4 qu'un modèle relativement simple permet de prendre en compte le couplage entre les résonances excitées de part et d'autre d'un guide plasmonique nanostructuré pour expliquer les modulations de la longueur de propagation. On peut toutefois noter que la structuration du film métallique ne suffit pas à elle seule pour moduler les pertes des guides plasmoniques nanostructurés.

Étant donné que le couplage entre les plasmons de surface de chaque interface est à l'origine des modulations, il est intéressant de se comparer aux performances d'un film métallique non-structuré. C'est ce qui est présenté dans la prochain paragraphe.

Film métallique mince

Nous avons également calculé les modes supportés par un film métallique mince non structuré déposé sur un substrat de GaAs. Il existe deux modes de surface guidés par le film métallique : l'un se propageant à l'interface GaAs/or (mode non-radiatif dans l'annexe C) et l'autre se propageant à l'interface air/or. Ce dernier fuit dans le substrat lors de sa propagation le long du film (mode radiatif dans l'annexe C). Nous avons comparé ce dernier mode (qui a une vitesse de groupe proche de la célérité de la lumière) avec le mode A_{-2} du guide plasmonique nanostructuré. À épaisseur égale, la longueur de propagation du guide plasmonique nanostructuré est plus faible pour le régime faible perte (Fig. 4.18).

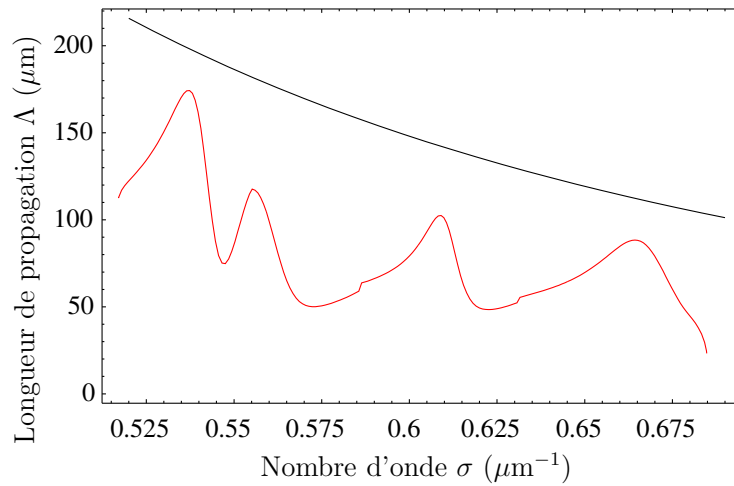


FIG. 4.18 – Calcul de la longueur de propagation Λ du mode de plasmon de surface à fuite se propageant à l'interface air/or le long d'un film métallique d'épaisseur $h = 40$ nm (en noir). La longueur de propagation du guide métallique nanostructuré est reportée en rouge.

Les longueurs de propagation du mode radiatif du film métallique non-structuré ont été calculées pour différentes épaisseurs d'or, et nous avons constaté que les performances du guide plasmonique nanostructuré sont comprises entre celles de films d'épaisseurs $h = 24$ nm et $h = 34$ nm (Fig. 4.19). Ces résultats sont en accord avec la nature des pertes (radiatives/non-radiatives) décrite dans les deux régimes de propagation au § 4.2.2. La longueur de propagation calculée pour le régime radiatif est comparable à celle obtenue pour un film de faible épaisseur ($h = 24$ nm). Le couplage radiatif du plasmon se propageant à l'interface air/or avec les ondes radiatives dans le substrat joue alors un rôle prépondérant dans les pertes. Au contraire, les longueurs de propagation obtenues pour un régime de propagation faible perte sont comparables à celles d'un film d'épaisseur proche de celle du guide

plasmonique nanostructuré. La fuite de l'onde de surface dans le substrat est alors plus faible.

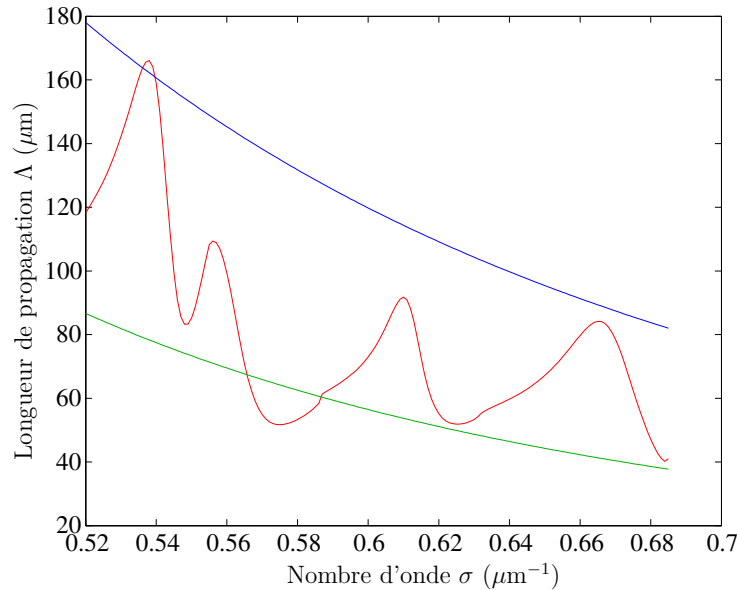


FIG. 4.19 – Calcul de la longueur de propagation Λ du mode de plasmon de surface à fuite se propageant à l'interface air/or le long d'un film métallique d'épaisseur $h = 24$ nm (en vert) et $h = 34$ nm (en bleu). La longueur de propagation du guide métallique nanostructuré est reportée en rouge.

Ce résultat confirme que la diffraction de la lumière joue un rôle négligeable sur les pertes des guides nanostructurés. Elle augmente légèrement les pertes du système mais avec un impact plutôt modéré au vue du nombre de canaux radiatifs dans les guides plasmoniques nanostructurés. C'est d'avantage la fuite de l'énergie du mode dans le substrat et l'absorption dans le métal qui limitent les performances du guide plasmonique.

4.2.4 Modèle analytique - Résonances de Fano couplées

Modèle à une onde

Nous proposons un modèle “simpliste” pour expliquer la modulation des pertes dans les guides plasmoniques nanostructurés. Il s'agit d'un **modèle à une onde**, *i.e.* nous ne considérons qu'un seul mode dans les fentes du réseau métallique, en l'occurrence le moins atténué (mode fondamentale TM_0). Cette hypothèse nous permet d'exprimer la transmission de la lumière à travers le guide plasmonique nanostruc-

turé avec un modèle de Fabry-Pérot :

$$T(\sigma) = \left| \frac{t_{12}t_{23}}{1 - r_{21}r_{23} \exp(2ik_0n_e h)} \right|^2, \quad (4.14)$$

où t_{ij} et r_{ij} sont les coefficients de transmission et de réflexion à l'interface i/j , n_e est l'indice effectif du mode TM_0 et h est l'épaisseur du métal.

Les modes des plasmons de surface sont caractérisés par les pôles de la transmission, *i.e.* lorsque $1/T = 0$. L'équation des modes s'écrit :

$$1 - r_{21}r_{23} \exp(2ik_0n_e h) = 0. \quad (4.15)$$

Pour résoudre l'équation des modes, nous avons supposé que :

- les coefficients r_{ij} peuvent s'exprimer sous la forme de **résonances de Fano** avec un pôle σ_p et un zéro σ_z .
- l'indice effectif du mode dans les fentes du réseau est constant.

Grâce à la méthode modale décrite au chapitre 2, nous avons accès aux vecteurs d'onde des modes dans les fentes du réseau métallique et donc à l'indice effectif n_e . Nous avons pu vérifier que celui-ci variait très peu avec la longueur d'onde et qu'il vaut $n_e = 1.13$.

Pour déterminer les expressions de r_{21} et r_{23} , nous avons calculé les pôles et zéros des coefficients de réflexion à l'interface entre un réseau en or semi-infini percé périodiquement par des fentes et un milieu diélectrique semi-infini (de l'air pour r_{21} et du GaAs pour r_{23}) représentés schématiquement dans la Fig. 4.20.

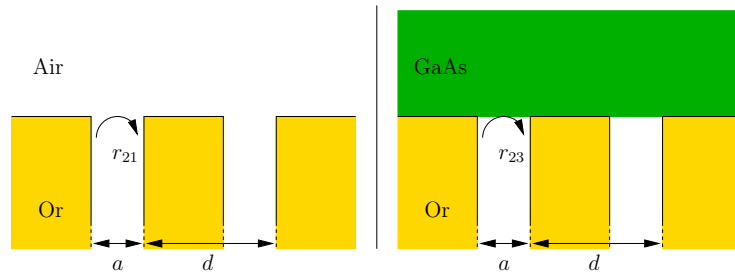


FIG. 4.20 – Les coefficients de réflexion r_{21} et r_{23} sont calculés à l'interface entre un réseau en or semi-infini de période d et de largeur de fentes a et un milieu diélectrique semi-infini (de l'air ou du GaAs).

Le calcul des pôles et zéros de r_{21} se fait de la manière suivante : on fixe un vecteur d'onde k_{x0} . On recherche le zéro σ_{z0} et le pôle σ_{p0} de r_{21} pour le mode A_{-2} . Nous supposons ensuite que les parties imaginaires des pôles et zéros de r_{21} sont

constantes le long du mode A_{-2} et nous extrapolons les parties réelles en supposant la vitesse de groupe inchangée le long du mode A_{-2} . Le coefficient de réflexion r_{21} est donc modélisé par une résonance Fano avec un zéro et un pôle qui se décalent linéairement lorsque l'on change le vecteur d'onde k_x . On obtient l'équation pour les zéros $\sigma_z(k_x)$ et les pôles $\sigma_p(k_x)$:

$$\sigma_z(k_x) = -\frac{1}{2d}(k_x - k_{x0}) + \sigma_{z0} \quad (4.16)$$

$$\sigma_p(k_x) = -\frac{1}{2d}(k_x - k_{x0}) + \sigma_{p0} \quad (4.17)$$

et pour le coefficient r_{21} :

$$r_{21}(\sigma, k_x) = B_{21} \left(\frac{\sigma - \sigma_z(k_x)}{\sigma - \sigma_p(k_x)} \right). \quad (4.18)$$

Nous procédons de même pour r_{23} . Cependant il faut tenir compte de plusieurs résonances Fano associées au modes S_{+5} , S_{-6} et S_{+6} . Le long de la relation de dispersion A_{-2} , le coefficients de réflexion r_{23} s'écrit :

$$r_{23}(k_x, \sigma) = B_{23} \left[\frac{\sigma - \sigma_z^{+5}(k_x)}{\sigma - \sigma_p^{+5}(k_x)} \right] \left[\frac{\sigma - \sigma_z^{-6}(k_x)}{\sigma - \sigma_p^{-6}(k_x)} \right] \left[\frac{\sigma - \sigma_z^{+6}(k_x)}{\sigma - \sigma_p^{+6}(k_x)} \right] \quad (4.19)$$

En tenant compte des expressions de r_{21} et r_{23} dans l'éq. 4.15, on obtient l'équation des modes :

$$f_p(\sigma, k_x) + \kappa(\sigma)f_z(\sigma, k_x) = 0 \quad (4.20)$$

avec :

$$\begin{aligned} f_p(\sigma, k_x) &= (\sigma - \sigma_p(k_x))(\sigma - \sigma_p^{+5}(k_x))(\sigma - \sigma_p^{-6}(k_x))(\sigma - \sigma_p^{+6}(k_x)) \\ f_z(\sigma, k_x) &= (\sigma - \sigma_z(k_x))(\sigma - \sigma_z^{+5}(k_x))(\sigma - \sigma_z^{-6}(k_x))(\sigma - \sigma_z^{+6}(k_x)) \\ \kappa(\sigma) &= B_{21}B_{23} \exp(4i\pi\sigma n_e h). \end{aligned} \quad (4.21)$$

$\kappa(\sigma)$ est une constante qui définit le couplage entre les plasmons de surface se propageant sur chaque interface du guide plasmonique nanostructuré. Lorsque ce couplage est nul, l'équation des modes se réduit à $f_p(\sigma, k_x) = 0$. Les solutions de cette équation sont donc les pôles de l'interface qui correspondent aux modes de l'interface d'un réseau métallique. Dans le cas que nous avons étudié, $\kappa(\sigma) \approx 0.27$.

4.3. Vers un contrôle du régime de propagation

Nous avons recherché les modes en résolvant l'éq. 4.20 pour le mode A_{-2} . La longueur de propagation est représentée sur la Fig. 4.21. La comparaison du modèle simplifié avec le calcul de la structure complète montre un accord qualitatif sur la longueur de propagation. En particulier, la longueur de propagation est bien modifiée au niveau des croisements des relations de dispersion.

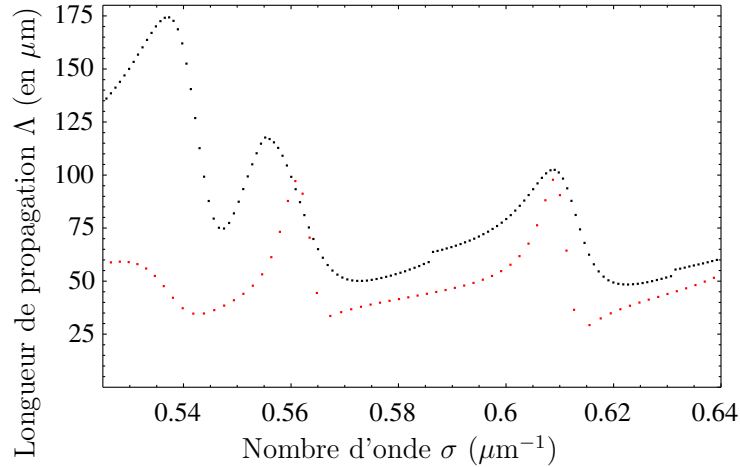


FIG. 4.21 – Calcul de la longueur de propagation $\Lambda(\sigma)$ pour le mode de plasmon de surface A_{-2} avec le modèle simplifié (en rouge) et la méthode modale (en noir).

Le calcul de la longueur de propagation du mode d'interface A_{-2} montrait une variation monotone en fonction de σ (Fig. 4.17). Ici, le modèle simplifié démontre que l'interaction entre les modes se propageant sur les deux interfaces du guide plasmonique nanostructuré est à l'origine de la modulation du couplage radiatif.

Ces résultats encourageants devront être approfondis afin de répondre aux questions qu'ils soulèvent :

- Peut-on quantifier plus précisément le couplage entre les modes de plasmon de surface se propageant sur les deux interfaces des guides plasmoniques nanostructurés ?
- Existe-t-il une condition où le couplage entre deux modes de plasmons de surface ayant des vitesses de groupe différentes ouvre une bande interdite dans les diagrammes de dispersion ?

4.3 Vers un contrôle du régime de propagation

Nous discutons dans cette section des différents degrés de liberté qui peuvent permettre d'amplifier les modulations de la longueur de propagation. Nous distin-

guons l'influence des paramètres géométriques du réseau (période du réseau, largeur des fentes) et des matériaux utilisés (indice du substrat).

4.3.1 Influence des paramètres du réseau

Période du réseau

La période du réseau et l'indice des diélectriques situés au dessus et en dessous du guide permettent de régler les longueurs d'onde de fonctionnement de la structure. Une fois les matériaux choisis (substrat en GaAs et air au dessus du guide), la période a pour effet de modifier :

- le nombre d'ordres diffractés par le réseau dans l'air et le substrat
- les écarts entre les intersections des relations de dispersion des plasmons de surface Air/or et GaAs/or.

Nous avons modifié la période du réseau pour diminuer de moitié le nombre d'ordres diffractés par le réseau ($d = 1.45 \mu\text{m}$). Le mode A_{-1} a été calculé en conservant la même hauteur de réseau ($h = 40 \text{ nm}$) et un facteur de remplissage de métal par rapport à la période équivalente à celui du guide plasmonique étudié dans ce chapitre, *i.e.* avec $a = 80 \text{ nm}$. La courbe de dispersion du mode A_{-1} est représentée sur la Fig. 4.22(a). Nous avons reporté sur cette même figure les courbes de dispersion des modes A_{-2} et A_{+1} du guide plasmonique précédent ($d = 2.9 \mu\text{m}$) afin de couvrir la même gamme spectrale.

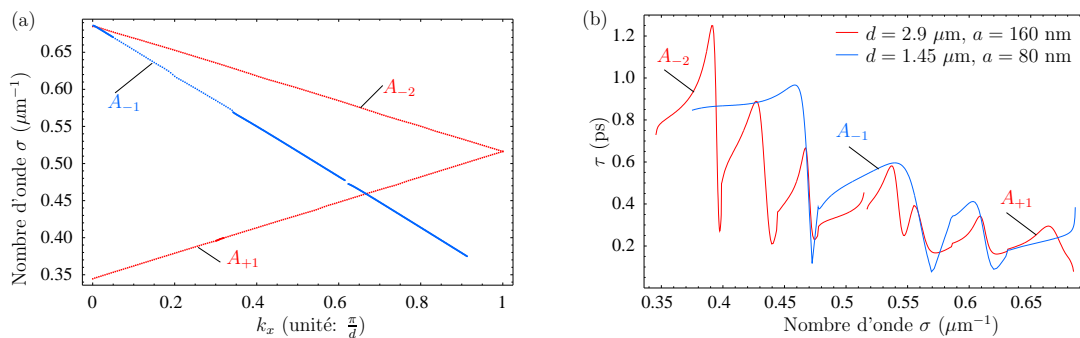


FIG. 4.22 – Courbes de dispersion (a) et calcul du temps de vie (b) de la résonance τ pour deux réseaux métalliques de même hauteur $t = 40 \text{ nm}$. Les périodes et les largeurs des fentes sont différentes mais le taux de remplissage de métal est le même pour les deux structures.

Le temps de vie de la résonance a été représenté sur la Fig. 4.22(b) en fonction de σ . Ce calcul montre que la longueur de propagation du régime faible perte est très peu affectée par le nombre de canaux radiatifs dans les guides plasmoniques

nanostructurés (ici les ondes diffractés par le réseau). On retrouve le rôle négligeable de la diffraction sur les propriétés des résonances dans le régime faible perte.

En doublant la période, on augmente le nombre d'intersections des courbes de dispersion dans un même domaine spectral. On passe plus rapidement d'un régime radiatif à un régime faible perte en changeant la fréquence. Les modulations des pertes sont alors plus marquées ce qui améliore les propriétés de sélectivité spectrale des guides plasmoniques nanostructurés.

Largeur des fentes

Nous avons calculé les longueurs de propagation du mode A_{-1} pour un guide plasmonique nanostructuré de période $d = 1.45 \mu\text{m}$ et d'épaisseur $t = 40 \text{ nm}$ pour différentes largeurs de fentes ($a = 50, 80$ et 160 nm). Le résultat du calcul est donné sur la Fig. 4.23. En élargissant les fentes, la longueur de propagation diminue, car le couplage radiatif des plasmons de surface augmente. En diminuant la largeur des fentes, on tend vers les propriétés d'un film métallique non structuré et on diminue l'impact du couplage radiatif dû à la diffraction.

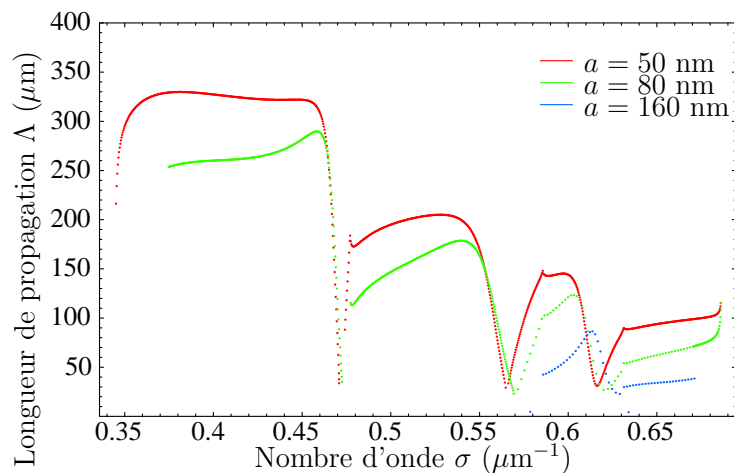


FIG. 4.23 – Calcul de la longueur de propagation du mode A_{-1} pour trois réseaux métalliques avec des largeurs de fente a différentes mais des périodes ($d = 1.45 \mu\text{m}$) et hauteurs ($t = 40 \text{ nm}$) identiques.

4.3.2 Influence de l'indice du substrat

Le décalage spectral des résonances GaAs/Or entre les mesures et les calculs de transmission met en lumière la possibilité de contrôler le régime de propagation sur les guides plasmoniques nanostructurés. En effet, en modifiant l'indice de réfraction

sous le métal, on agit sur les propriétés du plasmon se propageant à l'interface substrat/métal. Les pentes des relations de dispersion des modes S_p sont alors changées. Cela permet de décaler l'intersection des relations de dispersion, et de contrôler la propagation et le couplage radiatif du plasmon de surface Air/Or grâce au plasmon de surface Or/GaAs. Nous avons calculé la longueur de propagation du mode A_{-2} en fonction de l'indice effectif du substrat n_{eff} . Le résultat est présenté sur la Fig. 4.24 pour un nombre d'onde fixe $\sigma = 0.572 \mu\text{m}^{-1}$ ($\lambda = 1.748 \mu\text{m}$). Le changement d'indice permet de moduler la longueur de propagation et de passer continûment d'un régime de propagation à un autre. En particulier, un faible changement d'indice ($\delta n/n \approx 1\%$) permet de doubler la longueur de propagation ($\Lambda \times 2$) et de changer de régime ($\delta n/n \approx 2\%$).

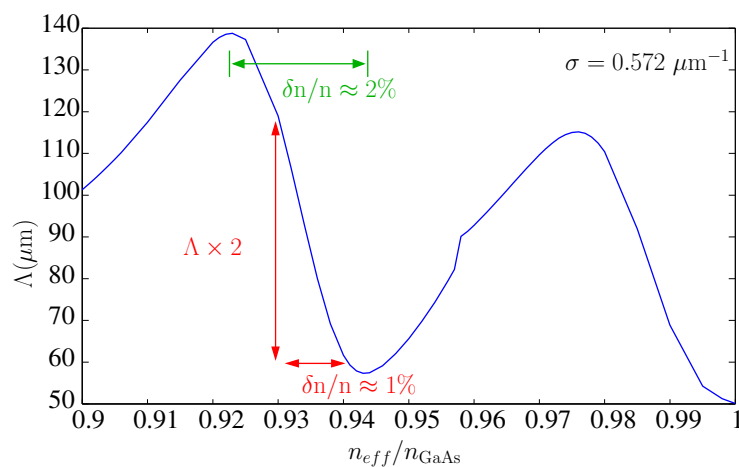


FIG. 4.24 – Longueur de propagation calculée en fonction de l'indice n_{eff} sur la branche A_{-2} pour $\sigma = 0.572 \mu\text{m}^{-1}$.

Les amplitudes de la longueur de propagation entre le régime radiatif et faible perte sont bien plus importantes à mesure que la longueur d'onde augmente. Nous avons calculé la longueur de propagation le long de la branche A_{-1} pour différents indices. La longueur de propagation est tracée sur la Fig. 4.25 pour $\sigma = 0.33 \mu\text{m}^{-1}$. Cette fois-ci les modulations de Λ pour une variation d'indice de $\delta n/n = 1\%$ sont d'un facteur 5 d'un régime de propagation à l'autre.

Ce résultat ouvre la voie à des perspectives intéressantes pour le contrôle actif des plasmons de surface en utilisant, par exemple, des substrats dont les propriétés optiques changent sous une excitation externe (électrique, optique, ...). C'est le cas des substrats de semiconducteur dans le domaine de l'infrarouge moyen et du TeraHertz.

L'indice de réfraction optique d'un semiconducteur peut être modifié par la création ou la déplétion de porteurs libres (électrons ou trous). A titre d'exemple, l'ab-

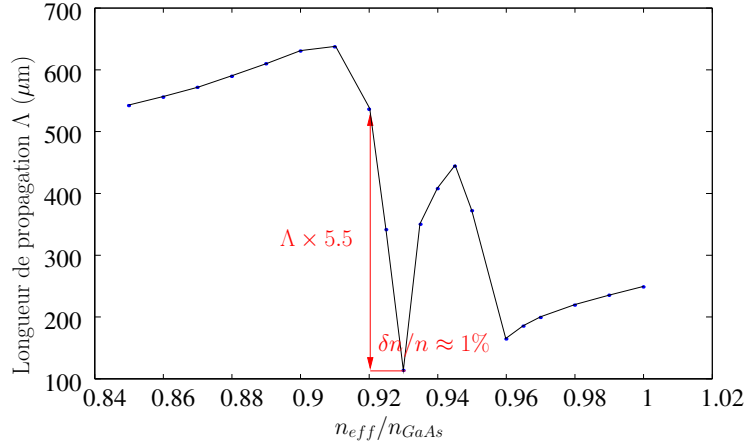


FIG. 4.25 – Longueur de propagation calculée en fonction de l'indice effectif n_{eff} sur la branche A_{-1} pour $\sigma = 0.33 \mu\text{m}^{-1}$.

sorption de photons permet d'injecter optiquement des porteurs. Une autre option est d'appliquer un champ électrique pour dépléter une zone du semiconducteur.

Dans le cas du GaAs, nous avons calculé la variation de concentration du dopage en électrons nécessaire pour obtenir une variation d'indice $\delta n/n = 1\%$. La fonction diélectrique du GaAs s'écrit en fonction de la concentration en électron N_e :

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - (1/\tau - c)^2} + i \frac{\omega_p^2/\tau_c}{\omega(\omega^2 + (1/\tau_c)^2)} \right) \quad (4.22)$$

où ω_p est la fréquence plasma qui dépend de la concentration en électron N_e :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{N_e e^2}{\epsilon_\infty \epsilon_0 m_e^*}} \quad (4.23)$$

avec ϵ_∞ la constante diélectrique lorsque ω tend vers l'infini, m_e^* la masse effective de l'électron et μ_e sa mobilité.

La fonction diélectrique dépend de la fréquence plasma ω_p qui change selon la concentration en électrons N_e . On peut donc contrôler l'indice du GaAs en changeant la concentration en électrons. Par exemple sur la Fig. 4.24, la variation d'indice optique pour $\sigma = 0.572 \mu\text{m}^{-1}$ demande l'introduction d'une densité d'électrons dans le GaAs $N_e = 5 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$. Tandis que pour $\sigma = 0.33 \mu\text{m}^{-1}$ (Fig. 4.25), il faut une densité d'électrons de $N_e = 1.7 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$. Le contrôle de l'indice optique sera d'autant plus facile que l'on augmente la longueur d'onde et que l'on se rapproche de la fréquence plasma ω_p , et son effet sera plus important car le contraste entre les longueurs de propagation des régimes à faible perte et radiatif augmente. Notons

que la modification du dopage modifie la partie réelle et imaginaire de ϵ . Cela induit une légère absorption dans le semiconducteur. Néanmoins celle-ci reste négligeable ici, la longueur d'atténuation des ondes dans le GaAs est de 1.5 mm, *i.e.* très grand devant le confinement du plasmon de surface substrat/métal.

Une solution pour injecter les électrons sous le réseau serait d'utiliser le métal du guide comme électrode. On pourrait alors imaginer modifier l'indice localement sous plusieurs électrodes, pour passer d'un régime faible perte à un régime radiatif schématiquement représenté sur la Fig. 4.26.

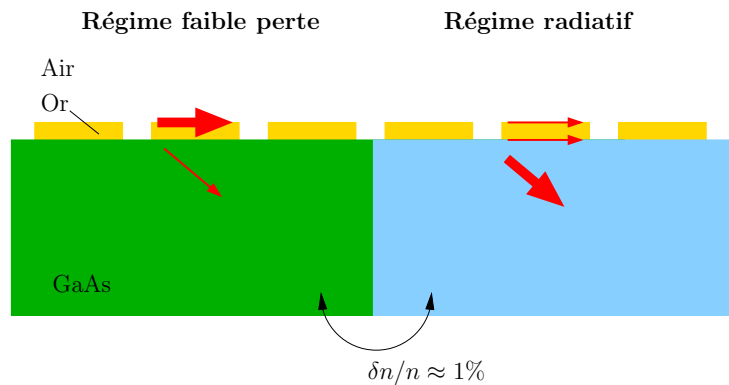


FIG. 4.26 – Intérêt du contrôle du régime de propagation avec l'indice optique du semiconducteur dans les guides plasmoniques nanostructurés. À gauche, le plasmon de surface excité à l'interface air/or se propage avec un très faible couplage radiatif. À droite, l'excitation des plasmons de surface se propageant sur chaque interface du réseau métallique permet de se coupler aux ondes radiatives.

4.4 Application des guides plasmoniques aux lasers à cascades quantiques

4.4.1 Guides plasmoniques dans les lasers à cascades quantiques

L'emploi des plasmons de surface dans les lasers à cascades quantiques s'est justifié pour ses qualités naturelles de polarisation et de confinement de la lumière. Les règles de sélection des transitions inter-sous-bandes (à l'origine de l'émission de photons dans les lasers à cascades quantiques) imposent une polarisation TM pour la lumière émise. De plus, les guides plasmoniques deviennent particulièrement avantageux par rapport aux guides d'ondes diélectriques conventionnels (à saut d'indice),

car il permet de grands facteurs de confinement optique, et ainsi la réalisation de lasers à cascades quantiques avec des couches actives plus fines.

Les premières démonstrations de lasers à cascades quantiques ont privilégié l'emploi de films en or non-structurés comme dans la référence [30] (Fig. 4.27). Les structures réalisées peuvent fonctionner dans la gamme $\lambda = 8 - 11.5 \mu\text{m}$ avec des températures de fonctionnement pouvant atteindre $T = 150 \text{ K}$.

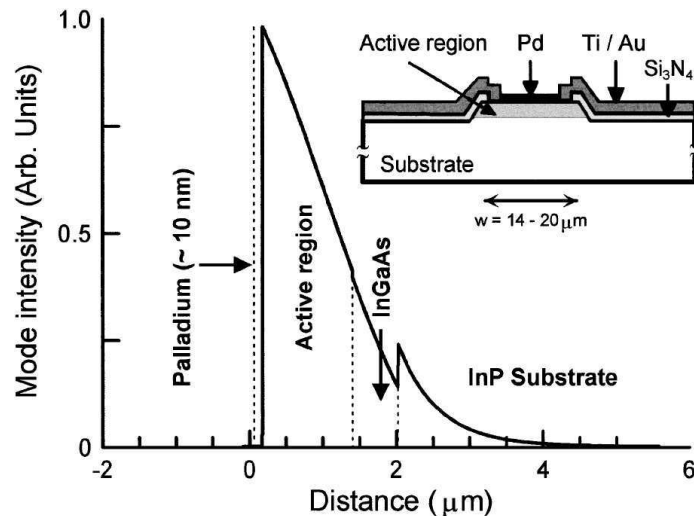


FIG. 4.27 – Figure extraite de la référence [30] : la lumière émise dans la zone active est guidée par le ruban métallique en Pd. Le profil du mode présente un facteur de recouvrement de l'ordre de 70 %

Malgré les avantages des guides plasmoniques concernant le confinement de la lumière, la diminution de l'épaisseur de la zone active et l'interaction importante entre les plasmons de surface et la lumière émise par le laser, il faut évidemment souligner l'augmentation des pertes par absorption dans le métal. C'est donc essentiellement dans le moyen infrarouge et dans le domaine THz que ces guides plasmoniques présenteront un intérêt pour les lasers à cascades quantiques.

Très souvent les lasers à semiconducteurs présentent un caractère multimodal indésirable dans de nombreuses applications (par exemple les techniques de spectroscopie). Il est donc nécessaire de sélectionner le mode désiré grâce à un miroir très sélectif, c'est par exemple le cas des lasers à contre-réaction répartie (ou "Distributed-FeedBack Laser"). L'idée de base est alors de réaliser au dessus de la zone active des lasers une structure périodique dans une cavité (à la manière des miroirs de Bragg) pour guider la lumière. Le couplage entre les ondes propagatives et contre-propagatives se propageant dans la cavité dépend alors du saut d'indice des matériaux utilisés dans le guide. Ce couplage devient efficace lorsque la périodicité de la

structure (d) est un multiple de la demi-longueur d'onde du laser λ_e dans la cavité :

$$d = p\lambda_e / (2n_{eff}) \quad (4.24)$$

où n_{eff} est l'indice effectif du guide et p un entier. Pour réaliser ces guides, on peut graver un film diélectrique ou métallique à la surface de la zone active.

De la même manière, cette technique a été transposée aux lasers à cascades quantiques [92] dans le domaine THz ($\lambda = 30 - 300 \mu\text{m}$). Ces dispositifs ont rapidement atteint un niveau de maturité suffisant avec des puissances de sorties élevées et des températures de fonctionnement allant jusqu'à 164 K.

Une structure DFB peut permettre une émission par la surface de la zone active et pas seulement par la tranche de la zone active. En gravant un réseau au dessus du réseau, on peut alors maîtriser l'extraction de la lumière dans une direction particulière. Deux situations sont particulièrement étudiées : l'extraction de la lumière parallèlement à la zone active ou dans la direction normale à la surface. On parle respectivement de lasers DFB de 1^{er} ou de 2nd ordre.

L'étude des guides plasmoniques nanostructurés a démontré leurs qualités de sélectivité spectrale, une des attentes des lasers à cascades quantiques. Dans la suite nous étudions les propriétés de ces guides pour savoir si ils peuvent apporter à la fois une sélectivité spectrale et un guidage à faible perte aux lasers DFB de 2nd ordre. L'étude du confinement et plus particulièrement son contrôle par la structuration sera un autre critère étudié.

4.4.2 Résultats obtenus et discussion

Contrairement à l'étude menée jusqu'à présent, nous étudions maintenant les propriétés des modes de plasmons de surface se propageant uniquement à l'interface GaAs/or d'un guide plasmonique nanostructuré, en particulier le mode S_{-1} . La structure étudiée est représentée sur la Fig. 4.28. Nous avons fixé l'indice effectif de la zone active à $n_{eff} = 3.21$. Cette valeur a été extraite de l'étude d'un laser à cascades quantiques en GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ [93]. On a recherché les modes de plasmon de surface qui permettent une émission par la surface à la longueur d'onde $\lambda = 10 \mu\text{m}$. La période du réseau est fixée à $3 \mu\text{m}$. L'émission par la surface à incidence normale impose un vecteur d'onde $k_x = 0$.

En incidence normale ($k_x = 0$), nous avons vu que le couplage des plasmons de surface dans les guides plasmoniques nanostructurés conduit à un anticroisement des courbes de dispersion. Cela signifie que la vitesse de groupe s'annule à $k_x = 0$. J'ai donc choisi de présenter le temps de vie des résonances τ plutôt que la longueur de propagation Λ . L'autre paramètre étudié est le confinement du mode δ_z . À titre

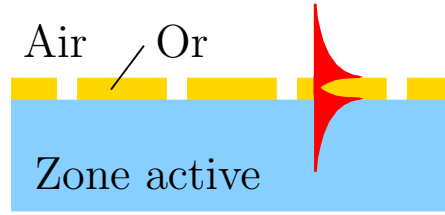


FIG. 4.28 – Guide plasmonique nanostructuré étudié pour des applications dans les lasers à cascades quantiques, de période $d = 3 \mu\text{m}$ et l'indice effectif de la zone active est $n_{\text{eff}} = 3.21$.

de comparaison, voici les valeurs de τ et δ_z d'un plasmon de surface se propageant à l'interface plane semi-infinie entre l'or et un diélectrique d'indice $n_{\text{eff}} = 3.21$: $\tau = 3.97 \text{ ps}$ et $\delta_z = 5.28 \mu\text{m}$.

Sur la Fig. 4.29, nous présentons une compilation des résultats obtenus pour les calculs de τ et δ_z en incidence normale pour différentes largeurs de fentes a et hauteurs du réseau h . On constate que le temps de vie de la résonance et le confinement augmentent avec la hauteur du réseau, jusqu'à un phénomène de saturation dont la valeur est proche du cas de l'interface plane. Les variations obtenues pour les deux largeurs de fentes ($a = 50$ et 100 nm) sont très similaires.

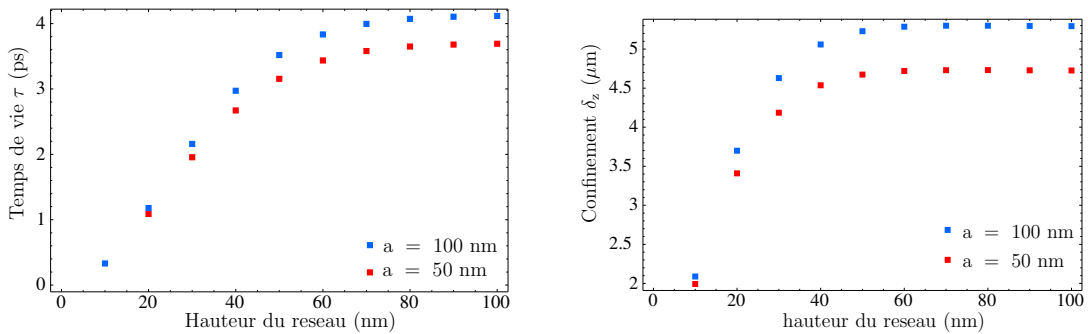


FIG. 4.29 – Application DFB 2 : calcul du temps de vie et du confinement du mode de plasmon de surface GaAs/Or S_{-1} avec $d = 3 \mu\text{m}$ et $\lambda \approx 10 \mu\text{m}$.

Par ailleurs, les plasmons de surface S_{-1} sont très difficiles à exciter, comme le montre le calcul de la relation de dispersion du mode S_{-1} représenté sur la Fig. 4.30. Le mode disparaît très rapidement autour de $k_x = 0$, dès que la relation de dispersion rencontre l'anomalie de Rayleigh.

Nous avons calculé les spectres de transmission autour de l'incidence normale. Nous avons remarqué que la résonance du mode S_{-1} disparaissait lorsque k_x tend vers 0. Par ailleurs, le calcul du temps de vie de la résonance est 10^7 fois plus grand pour un réseau métallique sans perte (*i.e.* avec $\text{Im}(\epsilon_m) = 0$) qu'avec perte.

Actuellement, nous ne sommes pas en mesure d'expliquer pourquoi nous n'observons pas de mode symétrique qui pourrait se coupler aux ondes planes et permettre

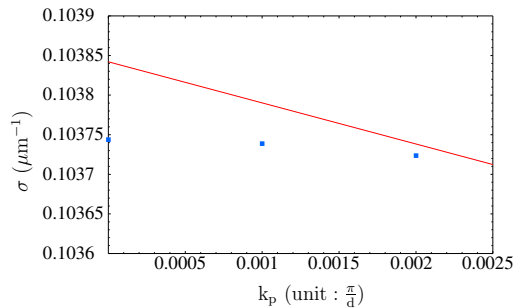


FIG. 4.30 – Calcul de la relation de dispersion du mode S_{-1} pour un guide plasmonique nanostructuré de période $d = 3 \mu\text{m}$, de largeur de fente $a = 100 \text{ nm}$ et d'épaisseur $h = 40 \text{ nm}$ (points bleus). La ligne rouge correspond à l'anomalie de Rayleigh.

une émission de lumière par la surface. Ces calculs demanderont une analyse plus détaillée pour comprendre ce phénomène. Malgré tout, ces résultats semblent encourageants dans la mesure où malgré la structuration du film métallique, il est possible de propager des plasmons de surface avec des pertes comparables aux performances des guides métalliques actuellement employés dans les lasers à cascades quantiques.

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les propriétés particulières des guides plasmoniques nanostructurés. Nous avons pour cela étudié leurs diagrammes de transmission $T(\sigma, k_x)$ théoriques et expérimentaux. L'étude des maxima de transmission le long des courbes de dispersion des plasmons de surface a révélé une modulation des pertes radiatives dans les guides plasmoniques nanostructurés. Ce phénomène est lié au couplage entre deux plasmons de surface se propageant sur les deux interfaces du guide. L'interaction entre ces deux modes de surface permet de modifier le couplage radiatif dans les réseaux métalliques. La comparaison avec le calcul de la longueur de propagation a confirmé notre interprétation concernant la modulation des pertes radiatives et de la longueur de propagation. On a pu distinguer deux régimes de propagation dans les guides plasmoniques nanostructurés :

- un régime **radiatif** : les plasmons de surface se propageant sur les deux interfaces du guide sont couplés aux ondes propagatives et cela se traduit par une augmentation de l'émission et de la transmission de lumière. Les pertes de ce régime sont essentiellement de nature radiative.
- un régime **faible perte** : les plasmons de surface se propageant à l'interface Air/or des guides plasmoniques nanostructurés sont très faiblement couplés aux ondes planes. La longueur de propagation des plasmons de surface est alors limitée par les pertes par absorption dans le métal.

L'originalité des guides plasmoniques nanostructurés par rapport à ceux qui sont classiquement étudiés (Cf. chapitre 1), repose sur le fait que nous excitions deux plasmons de surface : l'un permet de guider une onde le long du réseau et l'autre sert à contrôler les propriétés du guidage. À notre connaissance, il n'existe pas de système équivalent où le contrôle de la propagation dans les guides est assuré par un plasmon de surface.

La propagation des ondes de surface dans les guides plasmoniques nanostructurés offrent de nouvelles possibilités concernant la **sélectivité spectrale** et le **contrôle du couplage radiatif** des plasmons de surface. Ces propriétés dépendent directement de la structuration apportée au film métallique, à savoir la période et la largeur des fentes. Nous avons pu remarquer l'influence de l'indice du substrat pour le contrôle des deux régimes de propagation. Ce résultat ouvre la voie à un contrôle externe des guides plasmoniques nanostructurés par l'intermédiaire d'un contrôle de l'indice du substrat.

Chapitre 5

Cristaux plasmoniques 2D

anisotropes : couplages croisés et modes lents

En 1998, la publication par T. Ebbessen et *al.* des résultats expérimentaux sur la transmission de la lumière à travers un film métallique percé de trous sub-longueur d'onde [94,95] suscita un grand intérêt dans la communauté scientifique. Les auteurs observaient pour certaines fréquences des pics de transmission d'intensité supérieure à celle attendue par la théorie classique de Bethe [96]. Cette transmission extraordinaire met en jeu l'excitation de plasmons de surface sur les interfaces du réseau métallique. Les ondes de surface augmentent l'intensité du champ au niveau des trous, et favorisent ainsi la transmission de la lumière par effet tunnel [97]. L'article d'Ebbessen fut alors le premier d'une longue série sur la transmission extraordinaire dans les cristaux plasmoniques 2D (Cf. les références de l'article de revue sur la transmission extraordinaire [3]). Les premières études mirent en évidence le rôle de la périodicité [95], de l'épaisseur du film [97] et du type de métal employé [98,99]. Néanmoins si le rôle des plasmons de surface est admis dans le mécanisme de la transmission extraordinaire, l'influence de la structuration (taille et forme des trous) est encore mal comprise [100, 101, 102, 103]. Par exemple, Klein Koerkamp et *al.* ont mis en évidence à la fois un décalage spectral et un changement d'amplitude de la résonance en fonction de la forme des trous en étudiant la transmission de la lumière à travers des réseaux de trous rectangulaires avec différents rapports d'aspect [100]. La même équipe a également démontré expérimentalement l'influence de la taille

des trous pour une géométrie donnée et le rôle de l'orientation de la polarisation du champ incident sur le pic de transmission [101,102].

La détermination des relations de dispersion aide grandement à la compréhension des propriétés des plasmons de surface excités dans les cristaux plasmoniques 2D. Nous avons vu au chapitre précédent que les diagrammes de transmission permettent de révéler ces relations de dispersion. Plusieurs auteurs ont ainsi calculé ou mesuré les diagrammes de dispersion pour mieux comprendre l'impact de la structuration sur l'excitation des plasmons de surface et sur la transmission exaltée [104,102,105].

Sur la Fig. 5.1, nous avons représenté les mesures de transmission angulaire (a) réalisées par Barnes et *al.* sur un film métallique percé périodiquement de trous, et les calculs (b) effectués par Lalanne et *al.* sur la même structure. Il s'agit ici d'un réseau carré de trous ronds, *i.e.* les deux axes du réseau sont équivalents. Les mesures révèlent des résonances (bandes claires) attribuées à l'excitation de plasmons de surface à l'interface entre le métal et le substrat. Ces résultats sont confirmés par les calculs. On remarque dans ces deux figures un décalage spectral (flèches blanches) entre les résonances et celles attendues en repliant la relation de dispersion d'un plasmon de surface se propageant le long d'une interface plane (traits discontinus blancs). Dans les mesures, les résonances des plasmons de surface excités à l'interface air/métal sont peu visibles.

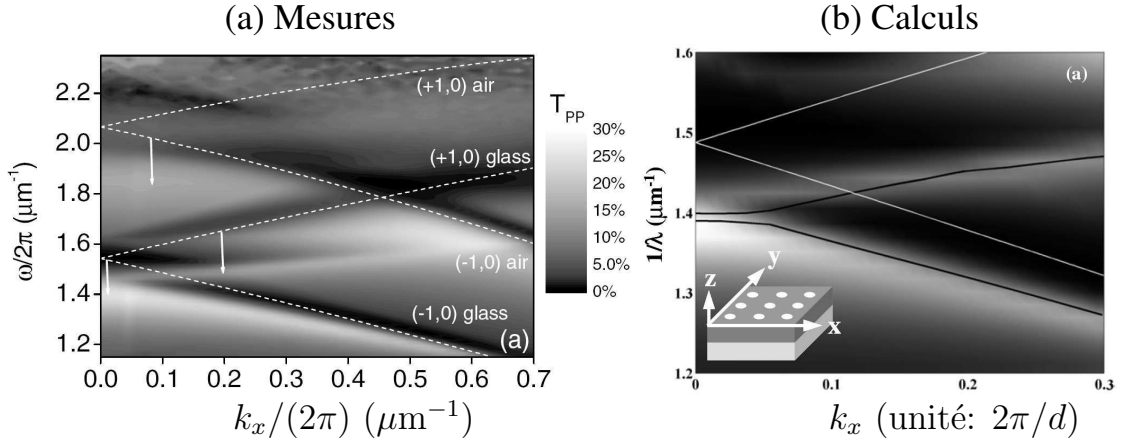


FIG. 5.1 – Diagrammes de transmission à travers un réseau métallique carré de trous ronds déposé sur un substrat en verre ($d = 420$ nm). Les mesures (a) et les calculs (b) sont issus respectivement des références [104] et [105].

Cependant ces résultats restent difficiles à interpréter car :

- les caractérisations sont majoritairement réalisées dans le domaine visible ou proche infra-rouge, là où les pertes par absorption des plasmons de surface deviennent importantes. Les résonances sont très larges et de ce fait difficiles à différencier.

- les conditions expérimentales (superficie des réseaux, onde incidente très focalisée) ne sont pas assez précises pour distinguer certains phénomènes de couplage entre plasmons de surface.

Par ailleurs dans les structures isotropes, les résonances de plasmons de surface se propageant dans des directions orthogonales ont lieu aux mêmes fréquences en incidence normale (centre de zone de Brillouin). Cela rend l'analyse de diagrammes de transmission particulièrement délicate (cf. Fig. 5.1).

Afin de lever la dégénérescence entre ces modes, nous proposons l'étude de cristaux plasmoniques 2D anisotropes, *i.e.* avec des périodes différentes dans les deux directions du cristal plasmonique \mathbf{u}_x et \mathbf{u}_y . Il s'agit d'un film métallique percé de trous carrés selon un motif rectangulaire représenté sur la Fig. 5.2. L'étude de ces structures est réalisée dans le domaine du proche et moyen infrarouge sur une grande gamme de longueur d'onde ($\lambda = 1 - 5.4 \mu\text{m}$). Cela permet de diminuer les pertes par absorption dans le métal, et d'obtenir des résonances plus fines et plus contrastées que dans le domaine visible. Comme nous le verrons dans ce chapitre, il est alors possible d'observer distinctement les résonances de plasmons de surface excitées sur les interfaces air/métal et substrat/métal dans les cristaux plasmoniques 2D.

Dans ce chapitre nous commencerons par donner une description schématique des relations de dispersion des plasmons de surface dans un cristal plasmonique 2D anisotrope. Nous étudierons ensuite les propriétés d'un réseau de trous carrés (largeur = 450 nm, périodes $d_x = 1.0 \mu\text{m}$ et $d_y = 1.25 \mu\text{m}$) dans un film d'or d'épaisseur 250 nm déposé sur un substrat de GaAs. Ces structures ont été caractérisées par des diagrammes de transmission obtenus pour les deux directions du réseau réciproque k_x et k_y en polarisation TE et TM. Ces mesures montrent des couplages entre plasmons de surface se propageant dans des directions quasi-orthogonales ($\approx 103^\circ$). Certains de ces modes présentent un très fort couplage radiatif et une faible vitesse de groupe. L'origine de ce phénomène de couplage mettant en jeu 3 plasmons de surface sera détaillée. Enfin nous présenterons les propriétés d'un cristal plasmonique 2D présentant une géométrie similaire mais une épaisseur plus faible (40 nm). Nous étudierons l'influence de cette faible épaisseur sur l'ensemble des phénomènes de couplage entre plasmons de surface observés jusqu'à présent dans les cristaux plasmoniques 1D et 2D.

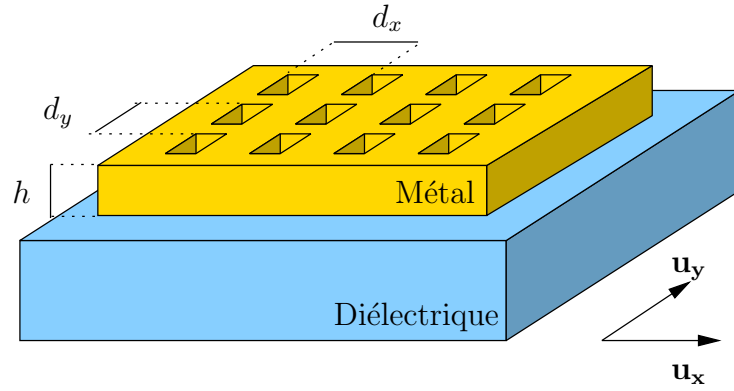


FIG. 5.2 – Vue schématique d'un cristal plasmonique 2D. Le film métallique d'épaisseur h est déposé sur un substrat diélectrique et percé périodiquement de trous carrés.

5.1 Relations de dispersion d'un cristal plasmonique 2D

Nous avons décrit l'influence de la périodicité sur la relation de dispersion des plasmons de surface dans les cristaux plasmoniques 1D (§ 2.1.2). Dans le cas 2D les relations de dispersion sont plus riches du fait de la double périodicité de la structure. Nous allons les décrire schématiquement dans cette section. Pour clarifier le discours, nous décrivons les modes de plus faibles énergies se propageant à l'interface air/métal, mais le même raisonnement pourra être appliqué aux plasmons de surface se propageant à l'interface métal/substrat et pour les branches de la relation de dispersion d'ordres plus élevés. Dans ce paragraphe, nous nous concentrons uniquement sur l'impact de la périodicité, sans tenir compte de l'influence de la forme et de la taille des ouvertures sur les relations de dispersion. On considérera donc qu'un plasmon de surface est excité lorsqu'une des ondes diffractées par le réseau à un vecteur d'onde proche de k_{spp} , où k_{spp} est le vecteur d'onde du plasmon de surface d'une interface plane métal/diélectrique (Éq. 1.2, § 1.3.1). De plus nous n'aborderons la question de l'excitation des modes que dans la section suivante § 5.2 (polarisation et symétries).

Nous commençons par rappeler l'effet de la structuration 1D sur les relations de dispersion des plasmons de surface. Le cas de l'excitation de plasmons de surface se propageant dans la direction \mathbf{u}_x est représenté schématiquement sur la figure 5.3(a). Les courbes de dispersion sont des droites d'équation approchée :

$$|k_{spp}| = k_x + p \frac{2\pi}{d} \quad (5.1)$$

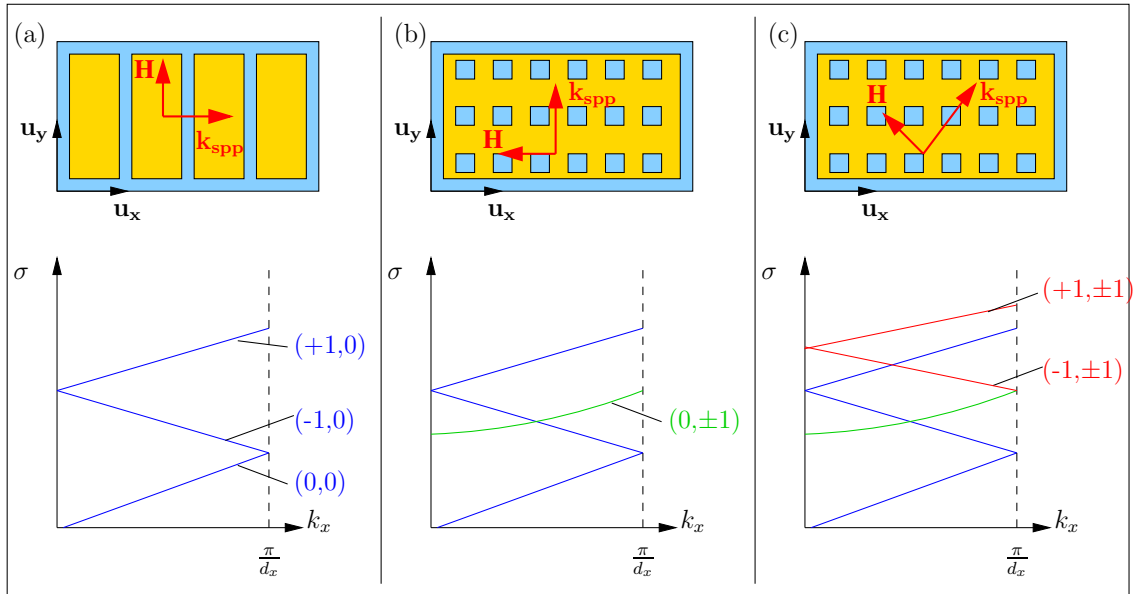


FIG. 5.3 – Description schématique des relations de dispersion dans les cristaux plasmoniques 1D (a) et 2D (b-c) pour les résonances de plasmons de surface de plus faibles énergies se propageant à l’interface air/métal. La direction de propagation des ondes de surface est indiquée par le vecteur d’onde \mathbf{k}_{spp}

où d est la période du réseau.

Dans le cas des cristaux plasmoniques 2D, les photons de vecteur d’onde incident $\mathbf{k} = k_x \mathbf{u}_x + k_y \mathbf{u}_y$ sont diffractés par le réseau qui “ajoute” à \mathbf{k} un vecteur d’onde supplémentaire $\mathbf{k}^{(p,q)} = pK_x \mathbf{u}_x + qK_y \mathbf{u}_y$ où p et q sont des entiers et $K_x = \frac{2\pi}{d_x}$, $K_y = \frac{2\pi}{d_y}$. Comme précédemment, on considère qu’un plasmon de surface est excité lorsque le module de son vecteur d’onde k_{spp} est égal à celui de l’onde d’ordre (p, q) diffractée par le réseau :

$$(k_x + pK_x)^2 + (k_y + qK_y)^2 = |k_{spp}|^2 \quad (5.2)$$

On supposera dans cette discussion que $d_x < d_y$ et que $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_z)$ est le plan d’incidence. Aux grandes longueurs d’onde $|\epsilon_m| \gg 1$, le vecteur d’onde du plasmon de surface k_{spp} peut s’écrire de manière approchée $k_{spp} \approx 2\pi\sigma$.

Lorsque $k_y = 0$ et $q = 0$, l’équation 5.2 devient :

$$\sigma(k_x) = \pm \frac{1}{2\pi} (k_x + pK_x). \quad (5.3)$$

Comme dans le cas 1D, ces courbes de dispersion sont des **droites**, et correspondent à l’excitation de plasmons de surface dans la direction \mathbf{u}_x . Par exemple, la Fig. 5.3(b)

montre les relations de dispersion (en bleu) des plasmons de surface des ordres (0,0), (-1,0) et (1,0) se propageant dans la direction \mathbf{u}_x excités par une onde incidente d'impulsion k_x . Dans le cas des branches (-1,0) et (1,0), le signe de la pente des courbes de dispersion dépend de celui de p . Les deux branches se croisent en incidence normale en $\sigma = 1/(2d_x)$. L'ouverture d'une bande interdite entre ces deux branches n'est pas représentée sur la Fig. 5.3(b).

Lorsque $k_y = 0$ et $p = 0$ (ou $k_x = 0$ et $q = 0$), l'équation 5.2 s'écrit :

$$\sigma(k_x) = \pm \frac{1}{2\pi} \sqrt{k_x^2 + (qK_y)^2} \quad (5.4)$$

Dans ce cas, les relations de dispersion des cristaux plasmoniques 2D sont des courbes **hyperboliques**. Elles sont représentées en vert pour les ordres (0, ± 1) sur la Fig. 5.3(b). On constate que l'équation 5.4 est inchangée quelque soit le signe de q . Ces modes correspondent à des plasmons de surface se propageant dans les directions $k_x \mathbf{u}_x + qK_y \mathbf{u}_y$ ($q = \pm 1$) symétriques par rapport à l'axe \mathbf{u}_x . Ces deux plasmons de surface sont couplés par le vecteur $2K_y \mathbf{u}_x$ (couplage non représenté sur la Fig. 5.3(b)). Nous mettrons en évidence les effets de ce couplage dans les diagrammes de transmission mesurés (§ 5.2.1).

Enfin si $p \neq 0$ et $q \neq 0$, l'équation de dispersion s'écrit (avec $k_y = 0$) :

$$\sigma(k_x) = \pm \frac{1}{2\pi} \sqrt{(k_x + pK_x)^2 + (qK_y)^2} \quad (5.5)$$

Comme précédemment, la relation de dispersion est inchangée quelque soit le signe de q . La direction de propagation des plasmons de surface est $(k_x + pK_x) \mathbf{u}_x + qK_y \mathbf{u}_y$. Les cas $(p, q) = (+1, \pm 1)$ et $(p, q) = (-1, \pm 1)$ sont représentés en rouge sur la Fig. 5.3(c).

Dans la suite, nous étudierons les diagrammes de dispersion de ces modes en fonction de k_x (onde plane incidente dans le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_z)$) ou k_y (onde plane incidente dans le plan $(\mathbf{u}_y, \mathbf{u}_z)$). Les modes excités par l'onde diffractée (p, q) à l'interface air/métal (resp. substrat/métal) sont notés $A(p, q)$ (resp. $S(p, q)$).

La description présentée ici ne tient pas compte de l'influence de la polarisation et de l'orientation de l'onde incidente sur l'excitation des résonances. Nous verrons dans l'étude des diagrammes de transmission qu'ils conditionnent, en fonction des symétries des modes, l'excitation des ondes de surface se propageant dans les cristaux plasmoniques 2D.

5.2 Cristaux plasmoniques 2D épais

5.2.1 Diagrammes de dispersion

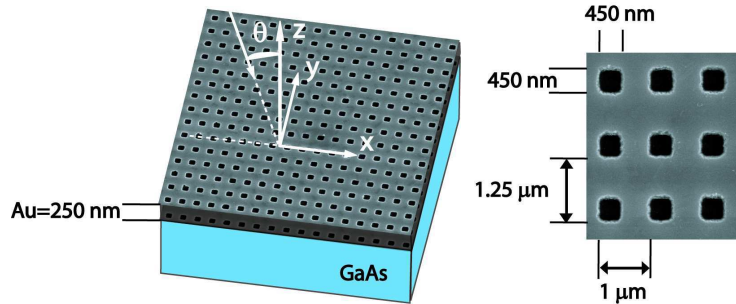


FIG. 5.4 – Photographies prises au microscope électronique à balayage du cristal plasmonique 2D anisotrope sur un substrat de GaAs : un motif carré de côté $a = 450$ nm est répété avec des périodes $d_x = 1.0 \mu\text{m}$ et $d_y = 1.25 \mu\text{m}$ dans les deux directions du réseau. L'épaisseur d'or est 250 nm.

La structure étudiée est un réseau 2D de trous carrés (de côté $a = 450$ nm) percés dans un film d'or d'épaisseur $h = 250$ nm et déposé sur un substrat de GaAs. Les périodes du réseau sont $d_x = 1.0 \mu\text{m}$, $d_y = 1.25 \mu\text{m}$ (Fig. 5.4). La surface du réseau est de $2 \times 2 \text{ mm}^2$. Nous avons mesuré la transmission de la lumière dans la gamme spectrale $\lambda = 1 - 5.4 \mu\text{m}$ et avec une résolution spectrale $\Delta\sigma = 10 \text{ cm}^{-1}$ afin d'éliminer les résonances Fabry-Pérot dans le substrat de $350 \mu\text{m}$ d'épaisseur (cf. § 4.1.2). L'angle d'incidence θ de la lumière sur le réseau varie entre $\theta = 0^\circ$ et 60° par pas de 0.4° . L'angle de convergence de la lumière sur l'échantillon est fixé à $\Delta\theta = \pm 0.5^\circ$. Avec un temps d'intégration de 4 min par spectre, nous obtenons un rapport signal sur bruit de l'ordre de 10^3 .

Les résultats sont donnés sur la Fig. 5.5 : la transmission est représentée en niveaux de gris avec une échelle logarithmique (pour améliorer le contraste des figures), en fonction du nombre d'onde σ et du vecteur d'onde (k_x ou k_y). Les deux axes principaux du cristal plasmonique ont été étudiés : $k_y = k_0 \sin \theta$ avec $k_x = 0$ (Figs. 5.5(a,b)) et $k_x = k_0 \sin \theta$ avec $k_y = 0$ (Figs. 5.5(c,d)). Les diagrammes de transmission révèlent de nombreuses relations de dispersion avec une excellente visibilité. Elles sont caractérisées par la proximité d'un maximum et d'un minimum de transmission (bandes claires et sombres dans les diagrammes de transmission). Comme dans le cas 1D, l'excitation des plasmons de surface se manifeste donc dans le spectre par des résonances de Fano (§ 4.1.2 du chapitre 4) [106, 107]. Il faut néanmoins noter que les positions relatives des maxima et des minima de transmission sont inversées par rapport au cas des réseaux 1D (cf. Fig. 4.4, p. 79).

Dans les Figs. 5.5, on observe les résonances des plasmons de surface air/or et GaAs/or. Comme dans le cas des réseaux 1D, ces deux familles peuvent se différencier par les pentes des courbes de dispersion proportionnelles à $1/n$, où n est l'indice de l'air ($n = 1$) ou du substrat ($n \approx 3.4$). Les résonances les plus visibles correspondent aux modes excités le long de l'interface air/or. On retrouve également dans les diagrammes de transmission les différentes formes (droites, branches d'hyperbole) que nous avons décrites précédemment.

Dans la suite, nous allons décrire précisément les résultats obtenus pour chaque orientation et chaque polarisation du champ incident.

Afin de décrire les courbes de dispersion observées dans la Fig. 5.5, nous nous focalisons sur les modes excités à l'interface air/or (notés $A(p, q)$) des cristaux plasmoniques 2D, représentés schématiquement sur la Fig. 5.6 en fonction de k_x (à droite) et de k_y (gauche). Dans un premier temps, nous détaillons les courbes de dispersion linéaires (modes $A(0, -1)$ et $A(0, +1)$), puis les courbes de dispersion hyperboliques (modes $A(\pm 1, 0)$ et $A(0, \pm 1)$). Nous regarderons ensuite ce qui se passe au croisement de ces différentes courbes de dispersion.

Courbes de dispersion linéaires $\sigma(k_y)$ en polarisation TM (Fig. 5.5(b)) : modes $A(0, -1)$ et $A(0, +1)$

Les modes $A(0, -1)$ et $A(0, +1)$ se propagent dans les directions $-\mathbf{u}_y$ et $+\mathbf{u}_y$. Le champ magnétique de ces plasmons de surface est orienté selon l'axe \mathbf{u}_x : $\mathbf{H} = H_0 \exp(i((k_y \pm K_y)y - \omega t))\mathbf{u}_x$. Ces modes sont observés sur la Fig. 5.5(b) avec un vecteur d'onde incident coplanaire à $(\mathbf{u}_y, \mathbf{u}_z)$ et en polarisation TM, *i.e.* avec un champ magnétique \mathbf{H} parallèle à \mathbf{u}_x .

Les courbes de dispersion de ces deux modes se rejoignent à $k_y = 0$ autour de $\sigma = 1/d_y = 0.8 \mu\text{m}^{-1}$ et sont alors couplés par le vecteur d'onde $2K_y\mathbf{u}_y$. Comme pour les réseaux 1D, le couplage entre les plasmons de surface $A(0, -1)$ et $A(0, +1)$ conduit à la formation d'un mode symétrique (de plus faible fréquence) et d'un mode anti-symétrique (de plus haute fréquence) séparés par une bande interdite de largeur $\delta\sigma/\sigma = 2.5\%$. On remarque que l'intensité du pic de transmission du mode anti-symétrique décroît lorsque k_y tend vers 0.

Courbes de dispersion hyperboliques $\sigma(k_x)$ en polarisation TE (Fig. 5.5(c)) : modes couplés $A(0, \pm 1)$

Contrairement au paragraphe précédent, nous étudions maintenant l'excitation des modes $A(0, +1)$ et $A(0, -1)$ en fonction de k_x au lieu de k_y (à droite sur la Fig. 5.6). Ces deux modes se propagent dans les directions $\mathbf{k}_{p1} = k_x\mathbf{u}_x + K_y\mathbf{u}_y$ et

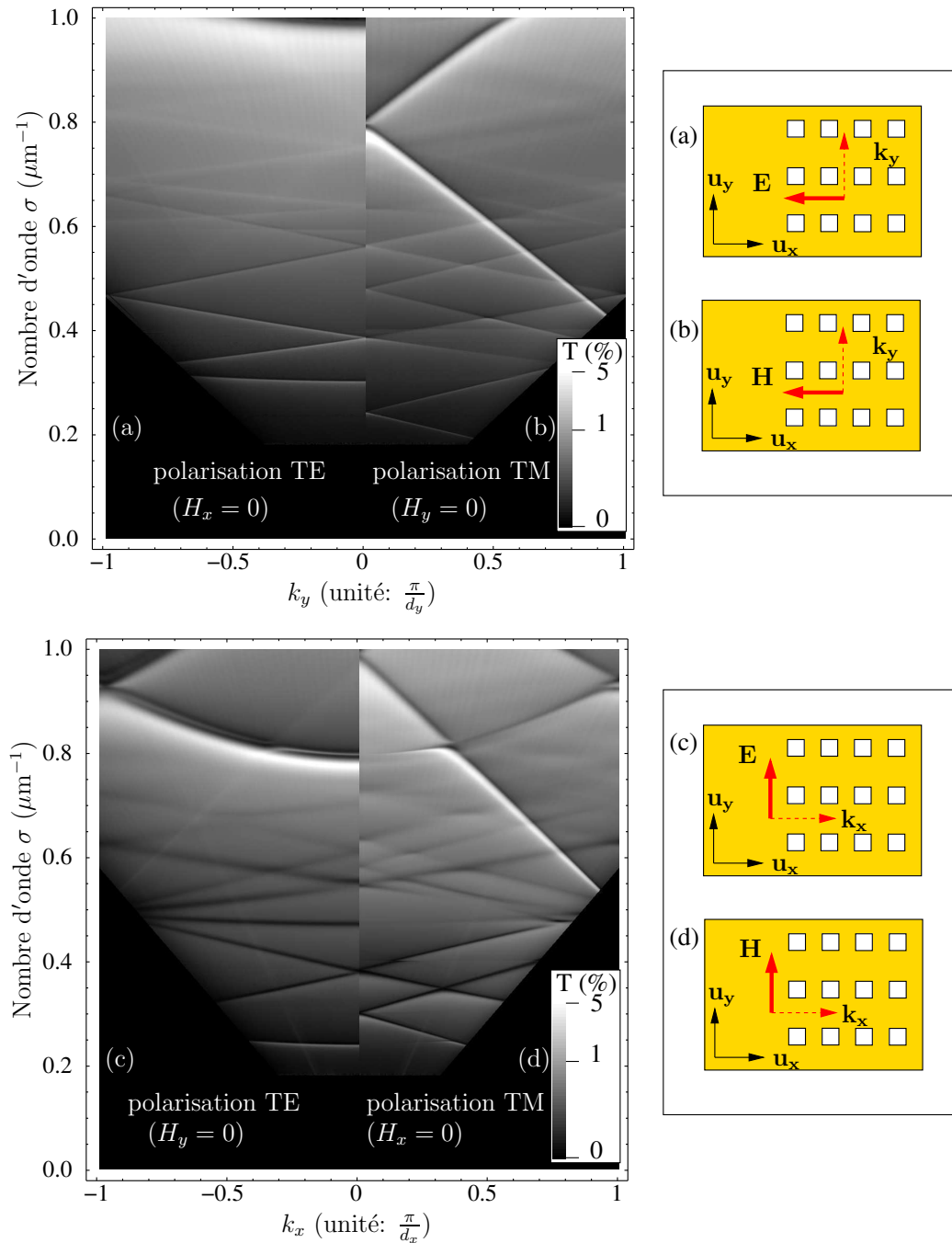


FIG. 5.5 – Diagrammes de transmission de lumière mesurés à travers un cristal plasmonique 2D anisotrope en or déposé sur un substrat de GaAs (largeur des trous $a = 450$ nm, périodes $d_x = 1.0$ μm et $d_y = 1.25$ μm , épaisseur du film $h = 250$ nm) représenté dans la Fig. 5.4. La transmission est représentée en niveaux de gris avec une échelle logarithmique ($\log(0.001 + T)$) en fonction de nombre d'onde σ et du vecteur d'onde k_x et k_y . Les conditions de mesure de la transmission de lumière (vecteur d'onde incident \mathbf{k}_x ou \mathbf{k}_y et polarisation TE et TM) sont détaillées dans les encadrés de droite.

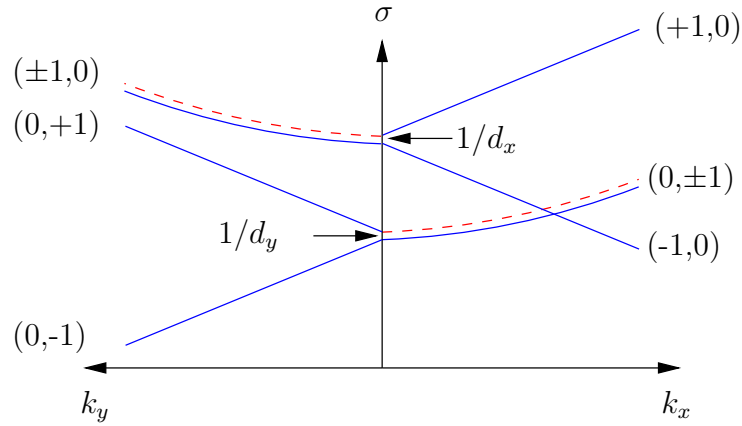


FIG. 5.6 – Description schématique des courbes de dispersion des plasmons de surface air/or dans les cristaux plasmoniques 2D anisotropes. Les courbes continues (resp. courbes discontinues) sont associées aux plasmons de surface excités par les champs incidents polarisés TM (resp. TE) sur la Fig. 5.5.

$\mathbf{k}_{p2} = k_x \mathbf{u}_x - K_y \mathbf{u}_y$, et la composante planaire de leur champ magnétique s'écrit :

$$\mathbf{H}_1 = H_0 \exp(i\mathbf{k}_{p1} \cdot \mathbf{r}) [\xi \mathbf{u}_x - \eta \mathbf{u}_y] \quad (5.6)$$

$$\mathbf{H}_2 = H_0 \exp(i\mathbf{k}_{p2} \cdot \mathbf{r}) [\xi \mathbf{u}_x + \eta \mathbf{u}_y] \quad (5.7)$$

avec les constantes de normalisation $\xi = K_y / \|\mathbf{k}_{p1}\|$ et $\eta = k_x / \|\mathbf{k}_{p1}\|$.

Dans cette configuration d'excitation, la symétrie par rapport à l'axe \mathbf{u}_x est conservée. Comme nous l'avons dit à la section précédente, ces deux modes sont donc couplés. Ils sont représentés schématiquement sur la Fig. 5.7.

Le champ magnétique des modes couplés s'écrit comme une combinaison linéaire des deux champs \mathbf{H}_1 et \mathbf{H}_2 :

$$\mathbf{H}_{1+2} = \mathbf{H}_1 + \mathbf{H}_2 = 2H_0 \exp(ik_x x) [\xi \cos(K_y y) \mathbf{u}_x + i\eta \sin(K_y y) \mathbf{u}_y] \quad (5.8)$$

$$\mathbf{H}_{1-2} = \mathbf{H}_1 - \mathbf{H}_2 = 2H_0 \exp(ik_x x) [i\xi \sin(K_y y) \mathbf{u}_x + \eta \cos(K_y y) \mathbf{u}_y] \quad (5.9)$$

Les champs magnétiques de ces deux modes couplés présentent des propriétés de symétrie différentes par rapport à l'axe \mathbf{u}_x . La composante H_x du champ magnétique de \mathbf{H}_{1+2} selon l'axe \mathbf{u}_x vérifie $H_x(y) = H_x(-y)$. Cette symétrie par rapport à l'axe \mathbf{u}_x est noté s_x . À l'inverse, la composante H_x du champ magnétique de \mathbf{H}_{1-2} est antisymétrique (a_x). L'ensemble des symétries des deux modes est résumé dans le tableau 5.1.

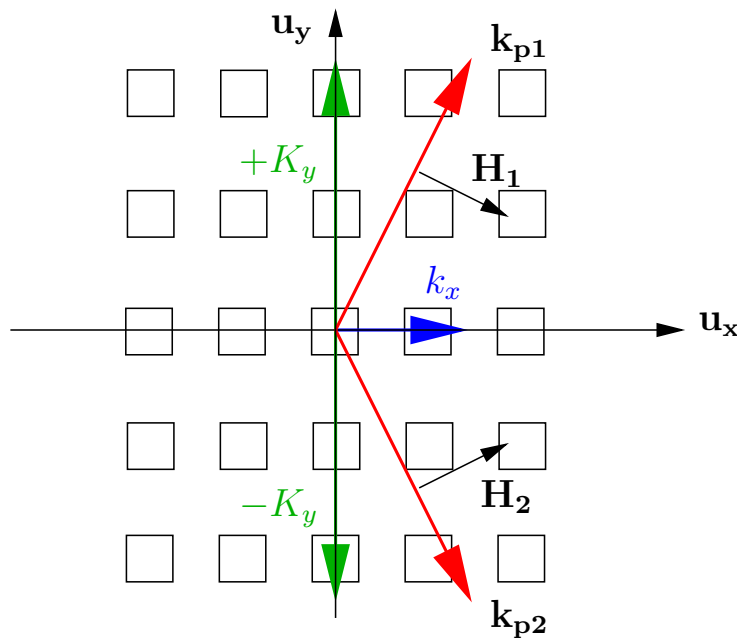


FIG. 5.7 – Représentation schématique des modes $A(0, 1)$ et $A(0, -1)$. L'onde incidente de vecteur d'onde k_x (représenté en bleu) est couplée aux modes $A(0, 1)$ et $A(0, -1)$ par le vecteur d'onde du réseau réciproque $\pm K_y \mathbf{u}_y$ (en vert). Les directions de propagation des plasmons de surface $A(0, 1)$ et $A(0, -1)$ sont données par $\mathbf{k}_{p1} = k_x \mathbf{u}_x + K_y \mathbf{u}_y$ et $\mathbf{k}_{p2} = k_x \mathbf{u}_x - K_y \mathbf{u}_y$ (en rouge).

\mathbf{H}_{1+2}		\mathbf{H}_{1-2}	
H_x	H_y	H_x	H_y
s_x	a_x	a_x	s_x

TAB. 5.1 – Description des propriétés de symétrie (s_x) et d'antisymétrie (a_x) des composantes H_x et H_y des champs magnétiques \mathbf{H}_{1+2} et \mathbf{H}_{1-2} par rapport à l'axe \mathbf{u}_x .

Sur la Fig. 5.5(c), l'onde incidente est en polarisation TE. La composante de son champ magnétique dans le plan de l'interface ($\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y$) s'écrit $\mathbf{H}_i = \exp(ik_x x) \mathbf{u}_x$, et il est symétrique par rapport à l'axe \mathbf{u}_x . L'onde incidente ne peut donc se coupler qu'au mode de champ magnétique \mathbf{H}_{1+2} , que nous noterons $A(0, \pm 1)_s$.

Néanmoins on voit sur la Fig. 5.5(c) deux résonances de Fano ayant des courbes de dispersion hyperboliques parallèles et partant de $\sigma \approx 0.8 \mu\text{m}^{-1}$ en $k_x = 0$. La branche de basse fréquence est la plus large et la plus visible (transmission maximale de l'ordre de 5%) et correspond au mode que nous venons de décrire $A(0, \pm 1)_s$. L'autre branche de plus haute fréquence, plus fine et moins visible, correspond au mode \mathbf{H}_{1-2} noté $A(0, \pm 1)_a$. Sa composante magnétique H_x est antisymétrique par rapport à l'axe \mathbf{u}_x . Ce mode ne devrait donc pas être excité dans cette configuration.

La différence d'intensité entre les deux résonances indique un couplage avec l'onde incidente nettement plus faible pour $A(0, \pm 1)_a$ que pour $A(0, \pm 1)_s$. On peut attribuer l'origine de cette excitation à la présence de défauts au voisinage des trous modifiant la symétrie des champs et permettant l'excitation du mode $A(0, \pm 1)_a$ par l'onde incidente.

Ce type de modes couplés apparaît également dans la Fig. 5.5(a). Dans ce quadrant, on étudie l'excitation des plasmons de surface en fonction d'une onde incidente de vecteur d'onde k_y et polarisée TE. Dans cette configuration la symétrie est conservée par rapport à l'axe \mathbf{u}_y . On distingue le début d'une courbe de dispersion hyperbolique partant de $\sigma \approx 0.95 \mu\text{m}^{-1}$ ($\lambda \gtrsim d_x$) à $k_y = 0$. Comme nous l'avons vu pour les modes $A(0, \pm 1)$, ce mode résulte du couplage entre les plasmons de surface $A(-1, 0)$ et $A(+1, 0)$ dans la Fig. 5.5(a). Dans ce quadrant, le champ magnétique H_y de l'onde incidente est symétrique par rapport à l'axe \mathbf{u}_y et peut exciter le mode de plasmons de surface couplés $A(\pm 1, 0)$ de composante H_y symétrique par rapport à l'axe \mathbf{u}_y .

Courbes de dispersion $\sigma(k_x)$ en polarisation TM (Fig. 5.5(d))

Sur la Fig. 5.5(d), le champ magnétique incident est parallèle à \mathbf{u}_y et toujours symétrique par rapport à l'axe \mathbf{u}_x . En suivant le raisonnement précédent, il peut donc exciter le mode $A(0, \pm 1)_a$. C'est ce que l'on observe sur la Fig. 5.5(d). On constate cependant la disparition de cette résonance au voisinage de $k_x = 0$. Ce résultat s'explique de la manière suivante. Dans l'éq. 5.9, on remarque que la composante H_y est proportionnelle à k_x . Au voisinage de l'incidence normale, le mode $A(0, \pm 1)_a$ est alors faiblement couplé au champ incident sur la Fig. 5.5(d).

Dans cette configuration, on excite également le mode $A(-1, 0)$ se propageant dans la direction $-\mathbf{u}_x$ (relation de dispersion droite partant de $\sigma \approx 0.95 \mu\text{m}^{-1}$ en $k_x = 0$). Sa courbe de dispersion croise celle du mode $A(0, \pm 1)_a$. On constate alors un **anticroisement** des courbes de dispersion de ces deux modes autour de $k_x = 0.35 \pi/d_x$ et $\sigma = 0.8 \mu\text{m}^{-1}$ avec une bande interdite $\delta\sigma/\sigma \approx 2\%$. Le mode couplé de plus basse fréquence présente la transmission la plus élevée du diagramme ($T > 5\%$) traduisant un fort couplage radiatif du mode couplé. Dans la suite, nous allons décrire ce phénomène de couplage entre les modes $A(-1, 0)$ et $A(0, \pm 1)_a$.

5.2.2 Couplage croisé entre 3 plasmons de surface

Pour mieux comprendre ce phénomène de couplage, nous avons comparé les diagrammes de transmission mesurés à ceux des calculs effectués par Christophe Sauvan et Philippe Lalanne de l'Institut d'Optique. Leur modélisation électroma-

gnétique repose sur un calcul vectoriel exact basé sur la méthode RCWA [108]. Les diagrammes de transmission mesuré et calculé sont représentés avec le même niveau de gris (en échelle logarithmique) en fonction de σ et k_x sur la Fig. 5.8. On constate un accord quantitatif entre les données issues des mesures et celles issues des calculs dans l'ensemble des diagrammes de transmission :

- les mêmes courbes de dispersion des plasmons de surface sont révélées dans les diagrammes. Les positions relatives des maxima et minima de résonances de Fano sont inchangées entre les calculs et les mesures de transmission
- les maxima de transmission mesurés et calculés sont en excellent accord et prennent quasiment les mêmes valeurs dans les deux diagrammes
- les minima de transmission sont moins marqués dans les mesures (en particulier lorsque σ augmente)
- le calcul de la transmission confirme également le couplage observé entre les courbes de dispersion des modes $A(-1,0)$ et $A(0,\pm 1)$ et l'ouverture de la bande interdite. Les vues de détail autour de l'anticroisement des courbes de dispersion de ces deux modes sont données sur la Fig. 5.8 pour la mesure et le calcul.

Sur la Fig. 5.8 le champ magnétique incident H_y est symétrique par rapport à \mathbf{u}_x . Il peut donc se coupler aux modes de même symétrie. C'est le cas du mode $A(-1,0)$ dont le champ magnétique dans le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$ s'écrit :

$$\mathbf{H}_{-1} = H_0 \exp(i(k_x - K_x)x)\mathbf{u}_y. \quad (5.10)$$

D'après le tableau 5.1, seul le mode couplé $A(0,\pm 1)_a$ (dont le champ magnétique est noté \mathbf{H}_{1-2}) est symétrique par rapport à \mathbf{u}_x . Il peut se coupler au champ incident.

Les modes $A(-1,0)$ et $A(0,\pm 1)_a$ présentent les mêmes propriétés de symétrie des champs et peuvent se coupler entre eux à l'intersection de leurs relations de dispersion. Le champ magnétique de ces nouveaux modes couplés est une combinaison linéaire des champs magnétiques \mathbf{H}_{-1} et \mathbf{H}_{1-2} : $\mathbf{H}_{-1} \pm \alpha \mathbf{H}_{1-2}$, où α est un coefficient traduisant le couplage entre les modes $A(-1,0)$ et $A(0,\pm 1)_a$. Les composantes du champ magnétique dans le plan de l'interface air/métal s'écrivent alors :

$$H_x = \pm 2i\alpha H_0 \exp(ik_x x)\xi \sin(K_y y) \quad (5.11)$$

$$H_y = H_0 \exp(ik_x x)[\exp(-iK_x x) \pm \alpha \eta \cos(K_y y)]. \quad (5.12)$$

Sur la Fig. 5.9, nous avons représenté schématiquement ces deux modes couplés composés de trois plasmons de surface se propageant dans trois directions différentes (flèches rouges). Le signe utilisé dans les combinaisons linéaires des modes couplés

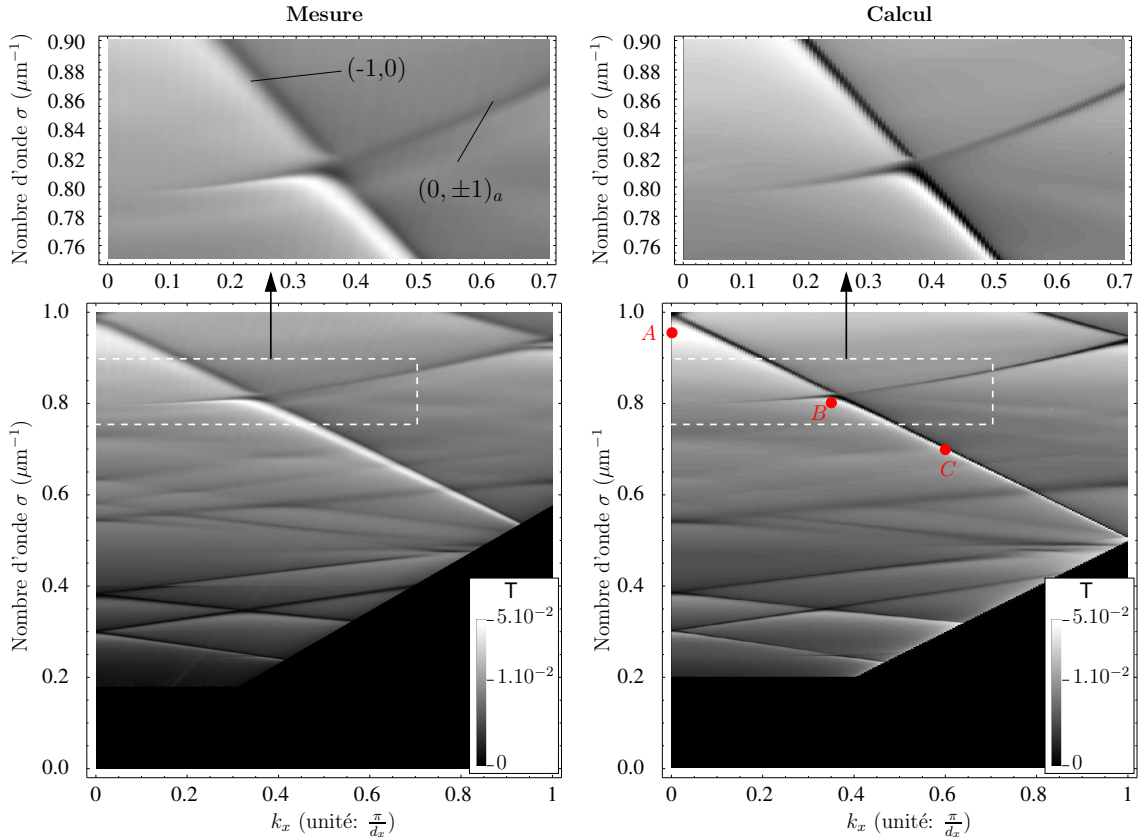


FIG. 5.8 – Mesure (à gauche) et calcul (à droite) des diagrammes de transmission à travers le cristal plasmonique représenté sur la Fig. 5.4. En haut, vues détaillées de l’anticroisement entre les modes $A(-1,0)$ et $A(0,\pm 1)_a$.

ainsi que le coefficient de couplage α sont rajoutés en bleu sur la Fig. 5.9. Au niveau du couplage, l’angle ϕ entre les directions de propagation des modes $A(-1,0)$ et $A(0,\pm 1)_a$ est $\phi \approx 103^\circ$. Malgré des directions de propagation quasi-orthogonales, il est remarquable de constater que le couplage entre ces deux modes est très efficace.

La vitesse de groupe v_{gx} dans la direction \mathbf{u}_x dépend de la pente des courbes de dispersion comme $v_{gx} = 2\pi c \frac{\partial \sigma}{\partial k_x}$. À l’anticroisement des courbes de dispersion des modes $A(-1,0)$ et $A(0,\pm 1)_a$, on a donc une diminution de v_{gx} qui s’annule. Par ailleurs, la faible pente des courbes de dispersion traduit une large densité d’états. C’est déjà le cas pour le mode $A(0,\pm 1)_a$. Cependant ce dernier est très mal excité par le champ incident au voisinage de l’incidence normale. Dans notre situation, le couplage avec le mode $A(-1,0)$ permet alors d’augmenter l’amplitude du champ magnétique H_y , et le couplage radiatif des modes.

Une autre particularité de ce mode couplé est de modifier la composante de champ magnétique H_x le long de la courbe de dispersion $A(-1,0)$ comme le montrent

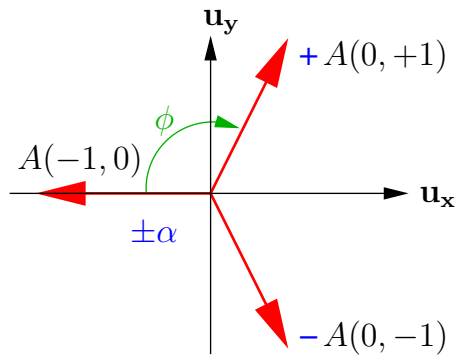


FIG. 5.9 – Représentation schématique des modes couplés entre les plasmons de surface $A(-1, 0)$ et $A(0, \pm 1)_a$ visibles sur les vues de détail de la Fig. 5.8. Les vecteurs d'ondes des différents plasmons de surface mis en jeu sont indiqués en rouge et les coefficients de couplage utilisés pour les combinaisons linéaires des modes sont indiqués en bleu. L'angle $\phi \approx 103^\circ$ est l'angle entre les directions de propagation des modes $A(-1, 0)$ et $A(0, \pm 1)_a$.

les équations 5.10 et 5.11. Afin de valider notre interprétation, la composante du champ magnétique H_x au niveau de l'interface air/métal a été calculée par Christophe Sauvan le long de la résonance $A(-1, 0)$ avec une onde plane incidente $\mathbf{H} = \exp(ik_x x)\mathbf{u}_y$, et cela pour différents angles d'incidence et longueurs d'onde (Fig. 5.10). Pour $k_x = 0$ et $\sigma = 0.96 \mu\text{m}^{-1}$, le champ magnétique est dirigé selon \mathbf{u}_y et $|H_x|^2 \approx 0$ sauf au voisinage de chaque coin des trous, où des résonances localisées apparaissent. Au croisement des relations de dispersion ($k_x = 0.35\pi/d_x$ et $\sigma = 0.8 \mu\text{m}^{-1}$), le champ magnétique $|H_x|^2$ présente un motif périodique dans la direction \mathbf{u}_y , proportionnel à une variation spatiale en $\sin^2(K_y y)$ identique à celle du mode $A(0, \pm 1)_a$ (cf. éq. 5.11), et superposé aux résonances localisées à chaque coin des trous. Un peu plus loin le long de la relation de dispersion de $A(-1, 0)$ ($k_x = 0.6\pi/d_x$ et $\sigma = 0.7 \mu\text{m}^{-1}$), le motif périodique disparaît de la carte de champ $|H_x|^2$. Ces résultats confirment le couplage des modes $A(-1, 0)$ et $A(0, \pm 1)_a$ dans les diagrammes de transmission de la Fig. 5.8 en $k_x = 0.35\pi/d_x$ et $\sigma = 0.8 \mu\text{m}^{-1}$.

Le même phénomène de couplage doit avoir lieu sur l'interface métal/substrat. Les vues de détail des diagrammes de transmission mesuré et calculé autour de la courbe de dispersion du plasmon de surface $S(-1, 0)$ se propageant à l'interface GaAs/or du cristal plasmonique révèlent elles aussi un anticroisement pour $k_x = 0.35\pi/d_x$ et $\sigma = 0.245 \mu\text{m}^{-1}$. Le couplage observé ici implique les modes $S(-1, 0)$ et $S(0, \pm 1)_a$ (Fig. 5.11). Comme à l'interface air/or du cristal plasmonique, ce couplage conduit à l'augmentation du couplage radiatif et de la densité d'états.

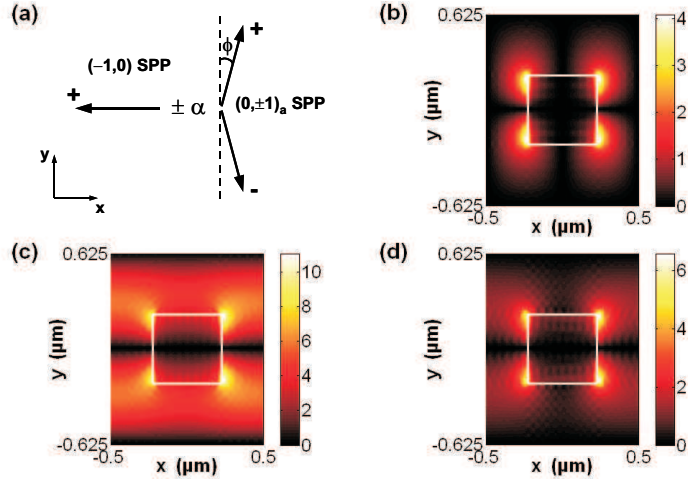


FIG. 5.10 – Calculs et figures préparés par Christophe Sauvan. (a) Représentation schématique du mode couplé observé dans la Fig. 5.8. Les vecteurs d’onde (flèches noires) montrent la direction de propagation. Les signes + et - correspondent au signe des combinaisons linéaires des champs magnétiques de chaque plasmon de surface impliqué dans le couplage. (b),(c) et (d) Intensité du champ magnétique $|H_x|^2$ calculée au niveau de l’interface air/or et pour une onde plane incidente $\mathbf{H} = \exp(ik_x x)\mathbf{u}_y$ respectivement en $(k_x = 0$ et $\sigma = 0.96 \mu\text{m}^{-1})$, $(k_x = 0.35\pi/d_x$ et $\sigma = 0.8 \mu\text{m}^{-1})$ et $(k_x = 0.6\pi/d_x$ et $\sigma = 0.7 \mu\text{m}^{-1})$ (points A, B et C sur la Fig. 5.8).

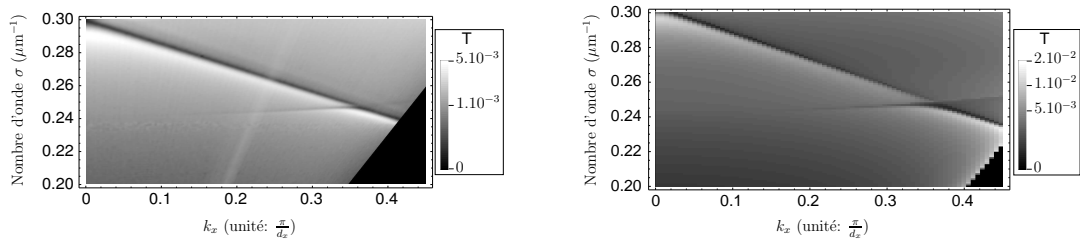


FIG. 5.11 – Mesure (à gauche) et calcul (à droite) du diagramme de la transmission : vue de détail de la Fig. 5.8 autour de la résonance $S(-1, 0)$ se propageant à l’interface GaAs/or du cristal plasmonique.

5.2.3 Propriétés des modes couplés

Le type de couplage des plasmons de surface observé au § 5.2.2 ouvre de nouvelles perspectives pour le contrôle des plasmons de surface. En effet, il permet d’augmenter la densité d’états de ces modes et les interactions lumière-matière du fait de la faible vitesse de groupe autour de l’anticroisement des relations de dispersion (point B sur la Fig. 5.8). Il s’accompagne également d’une exaltation du couplage radiatif des plasmons de surface.

De plus, le couplage des plasmons de surface a la particularité d'avoir lieu en dehors des bords et du centre de la zone de Brillouin (autour de $k_x = 0.35 \frac{\pi}{d_x}$ et $\sigma = 0.8 \mu\text{m}^{-1}$ pour les modes $A(-1, 0)$ et $A(0, \pm 1)_a$) contrairement aux cas des cristaux plasmonique 1D ou 2D isotrope. En effet dans les réseaux 1D ces couplages se produisent entre deux plasmons de surface contra-propagatifs (cf. § 4.1.2). Pour les cristaux plasmoniques 2D isotropes ($d_x = d_y$), les différentes branches des courbes de dispersion de premier ordre ($p = 0$ ou $q = 0$) se croisent également aux bords et au centre de la zone de Brillouin. Au contraire dans les cristaux plasmoniques 2D anisotropes, la position de cette bande interdite dans l'espace (k_x, σ) peut-être ajustée par le choix des périodes d_x et d_y . En tenant compte des expressions simplifiées des relations de dispersion des modes $A(-1, 0)$ et $A(0, \pm 1)_a$ (données respectivement par les éqs. 5.3 et 5.4), on obtient la position du couplage entre ces deux modes :

$$k_x \approx \frac{\pi}{d_x} \left(1 - \frac{d_x^2}{d_y^2} \right) \quad (5.13)$$

$$\sigma \approx \frac{1}{2d_x} \left(1 + \frac{d_x^2}{d_y^2} \right). \quad (5.14)$$

L'anisotropie du cristal est donc ici un degré de liberté supplémentaire pour contrôler la position (k_x, σ) des modes couplés de plasmons de surface.

5.3 Cristaux plasmoniques 2D minces

L'étude des cristaux plasmoniques 1D (fins) et 2D (épais) a mis en évidence des modifications des propriétés optiques des plasmons de surface :

- le couplage entre plasmons de surface se propageant sur les deux interfaces différentes d'un **cristal plasmonique 1D de faible épaisseur** permet de moduler les pertes radiatives et ainsi la longueur de propagation des modes de surface (chapitre 4).
- le couplage entre trois plasmons de surface se propageant sur une même interface d'un **cristal plasmonique 2D anisotrope** conduit à l'ouverture d'une bande interdite avec un mode présentant un fort couplage radiatif et une bande plate synonyme de forte densité d'états et de faible vitesse de groupe (§ 5.2).

On peut maintenant se demander quelles sont les propriétés des **cristaux plasmoniques 2D ayant à la fois une structuration anisotrope et une faible épaisseur** :

- Comment les plasmons de surface air/métal et substrat/métal interagissent-ils ? Peut-on mettre en évidence une modulation des pertes dans ces structures ?
- Les phénomènes de couplage observés entre plasmons de surface dans les cristaux plasmoniques 2D anisotropes épais sont-ils modifiés ?

Pour répondre à ces questions, nous avons fabriqué un réseau 2D en or sur un substrat de GaAs, de périodes $d_x = 1.0 \mu\text{m}$ et $d_y = 1.25 \mu\text{m}$, de largeur de trous $a = 250 \text{ nm}$ et de hauteur $h = 40 \text{ nm}$ (Fig. 5.12). Remarquons que cette structure présente les mêmes périodes d_x et d_y que celles étudiées au début de ce chapitre. Il est ainsi attendu les mêmes positions des relations de dispersion conformément à l'éq. 5.2. L'épaisseur du film est la même que dans les guides plasmoniques nanostructurés 1D étudiés au chapitre 4. Cependant, la largeur des motifs carrés (trous) est plus faible que celle du cristal plasmonique 2D étudié au début de ce chapitre. On ne s'attend pas à une modification des relations de dispersion mais plutôt à un changement dans l'efficacité de transmission.

Cette structure a été récemment caractérisée avec notre banc optique et nous présentons ici nos premières observations et analyses.

5.3.1 Diagrammes de transmission

Nous avons mesuré la transmission de la lumière dans la gamme spectrale $\lambda = 1 - 12.5 \mu\text{m}$ et avec une résolution spectrale $\Delta\sigma = 10 \text{ cm}^{-1}$ afin d'éliminer les résonances Fabry-Pérot dans le substrat de $350 \mu\text{m}$ d'épaisseur (cf. § 4.1.2). L'angle d'incidence θ de la lumière sur le réseau varie entre $\theta = 0^\circ$ et 50° par pas de 0.2° .

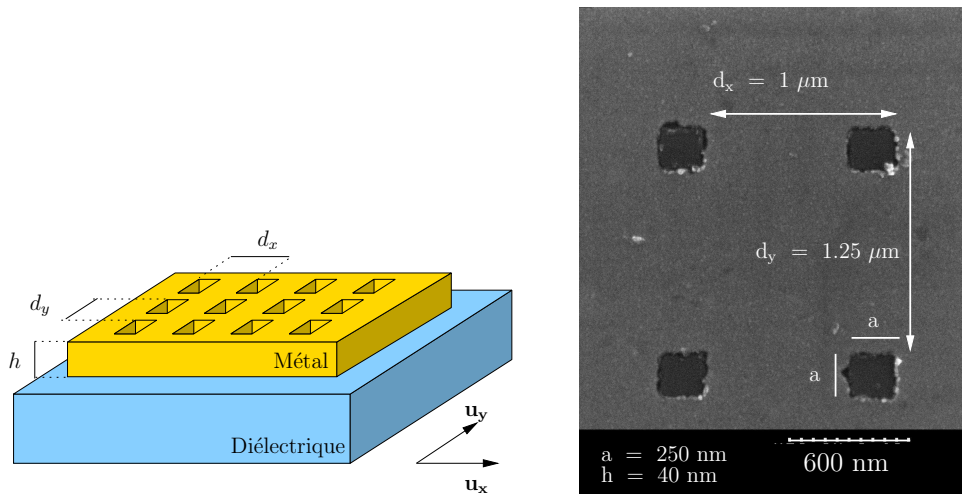


FIG. 5.12 – Vue schématique (à gauche) et photographie (à droite) prise au microscope électronique à balayage d’un cristal plasmonique 2D anisotrope fin.

L’angle de convergence de la lumière sur l’échantillon est fixé à $\Delta\theta = \pm 0.5^\circ$. La transmission mesurée est représentée en niveaux de gris uniquement en polarisation TM selon les deux axes principaux du cristal plasmonique (k_x et k_y) sur les Figs. 5.13 et 5.14.

Dans les deux diagrammes, les résonances de plasmons de surface se propageant le long des interfaces air/or et GaAs/or sont caractérisées par des résonances Fano d’une manière similaire à ce que l’on a observé précédemment. Notons cependant un comportement particulier dans ces deux diagrammes : les positions relatives des maxima et minima de transmission sont inversées entre les basses et hautes fréquences par rapport à la Fig. 5.5.

Les diagrammes de transmission des cristaux plasmoniques 2D présentés au § 5.2.2 avait montré un contraste important entre les maxima de transmission des résonances de plasmons de surface air/or et GaAs/or. Ce comportement diffère pour les réseaux 2D minces. On remarque une augmentation du niveau moyen de transmission, *i.e.* une transmission de la lumière plus efficace à travers le films mince hors résonance. Au contraire l’intensité maximale obtenue dans les diagrammes (pics de transmission) a très nettement diminuée (de 5% à 2.5%), traduisant un couplage moins efficace de l’onde incidente avec les résonances. Notons que la diminution de l’épaisseur du film métallique et de la surface des trous ont des effets qui s’opposent dans le mécanisme de la transmission à travers le réseau.

Dans chacun des diagrammes de dispersion on retrouve bien les relations de dispersion telles qu’elles ont été précédemment décrites pour les cristaux plasmoniques 2D, *i.e.* sous forme de droites et de branches d’hyperboles.

Dans la Fig. 5.13, la transmission est mesurée avec un champ incident $\mathbf{H}_i = H_0 \exp(ik_x x) \mathbf{u}_y$ ce qui empêche d'exciter les plasmons de surface se propageant dans la direction \mathbf{u}_y . La résonance partant de $\sigma = 1.0 \mu\text{m}^{-1}$ en $k_x = 0$ correspond au mode $A(-1, 0)$. Les autres relations de dispersion visibles sur cette figure sont associées au plasmons de surface se propageant à l'interface GaAs/or.

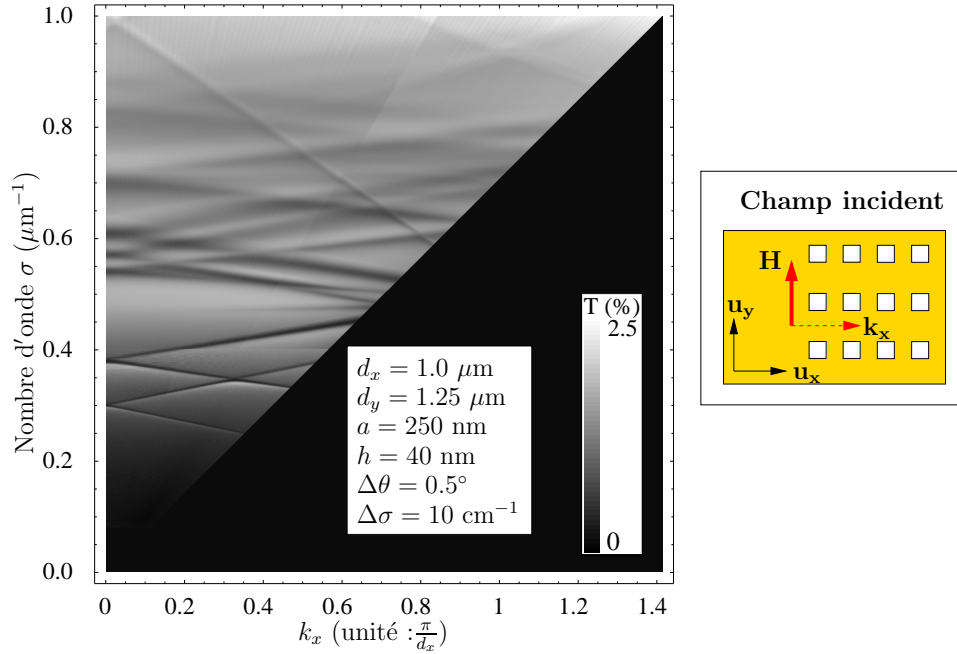


FIG. 5.13 – Mesure du diagramme de transmission à travers le réseau de trous représenté sur la Fig. 5.12 en fonction du vecteur d'onde k_x et du nombre d'onde σ (polarisation TM).

Le diagramme de transmission mesuré selon l'autre axe du cristal (k_y) est représenté sur la Fig. 5.14. Le champ incident $H_i = H_0 \exp(ik_y y) \mathbf{u}_x$ est symétrique par rapport à \mathbf{u}_x et se couple aux plasmons de surface présentant les mêmes symétries que lui. C'est le cas des résonances partant de $\sigma = 0.8 \mu\text{m}^{-1}$ en $k_x = 0$ correspondant aux modes $A(0, -1)$ (fréquences basses) et $A(0, +1)$ (fréquences hautes). Les autres relations de dispersion visibles dans cette figure sont associées aux plasmons de surface se propageant à l'interface GaAs/or.

5.3.2 Couplage croisé des modes $(-1, 0)$ et $(0, \pm 1)_a$

Contrairement au cas des cristaux plasmoniques 2D épais décrits au § 5.2.2, le diagramme de transmission représenté sur la Fig. 5.13 ne fait pas apparaître de couplage entre les modes $A(-1, 0)$ et $A(0, \pm 1)_a$. On remarque que le mode $A(0, \pm 1)_a$

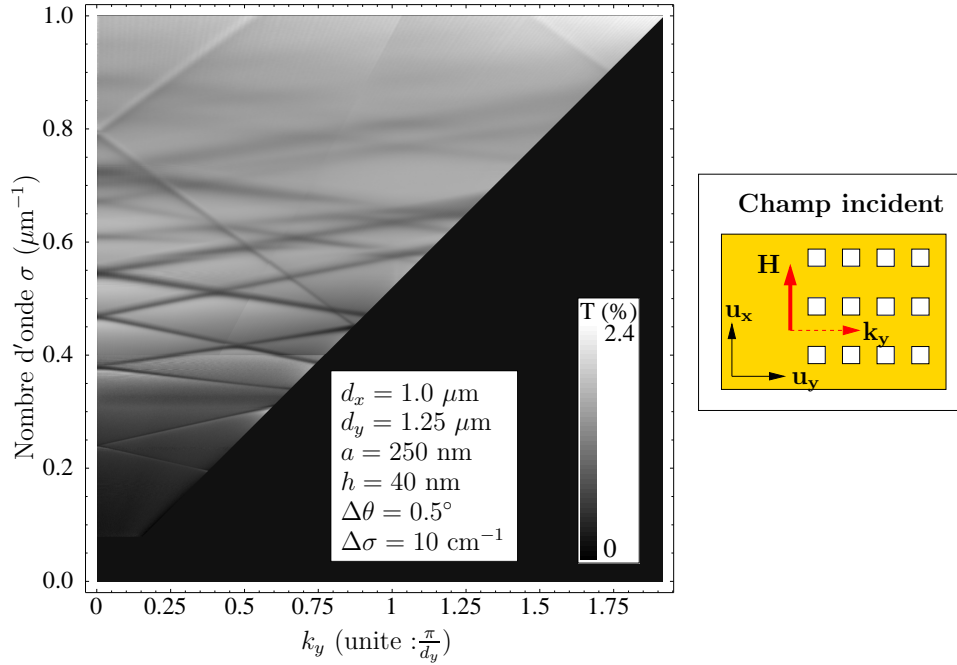


FIG. 5.14 – Mesure du diagramme de transmission à travers le réseau de trous représenté sur la Fig. 5.12 en fonction du vecteur d’onde k_y et du nombre d’onde σ (polarisation TM).

n’est pas excité dans ces mesures, sauf au voisinage du croisement avec le mode $A(-1, \pm 1)$ autour de $k_x \approx \pi/d_x$ et $\sigma = 0.95 \mu\text{m}^{-1}$.

Nous n’avons pas encore d’explication quant à la disparition du phénomène de couplage. Mais nous proposons ici une piste de réflexion. Entre les mesures présentées dans les Fig. 5.11 et 5.13 deux paramètres de la structure peuvent expliquer cette différence : l’épaisseur et la largeur des trous. La diminution de la superficie des trous peut expliquer une diminution de l’efficacité du couplage des modes $A(0, \pm 1)_a$ et $A(-1, 0)$. La surface des trous représente maintenant seulement $1/20^{\text{ème}}$ de la surface. Néanmoins, on ne s’attendait pas à une disparition totale de cet effet. Un calcul de l’efficacité de diffraction des modes $A(0, \pm 1)_a$ en fonction de la largeur des trous pourrait permettre de quantifier cette évolution. Nous envisageons également réaliser des mesures de transmission à travers un film mince percé de trous de 450 nm de largeur.

À l’inverse la diminution de l’épaisseur du film métallique favorise le couplage entre les plasmons de surface de l’interface air/métal et ceux de l’interface substrat/métal, comme nous allons le détailler au paragraphe suivant.

5.3.3 Modulation des pertes

Nous avons également cherché à savoir si les modulations des pertes décrites dans le chapitre 4 pour les réseaux 1D restent valables dans le cas des réseaux 2D. Les structures étant très différentes, j'ai préféré étudier les propriétés du mode $A(0, -1)$ de la Fig. 5.14, car le domaine de longueur d'onde est plus proche du mode A_{-2} du guide plasmonique nanostructuré 1D étudié au chapitre 4 (respectivement $\sigma = 0.45 - 0.8 \mu\text{m}^{-1}$ et $\sigma = 0.52 - 0.69 \mu\text{m}^{-1}$).

Pour étudier les modulations des pertes, nous avons procédé de la même manière que lors de l'étude des guides plasmoniques nanostructurés 1D : les maxima de transmission ont été relevés le long du mode $A(-1, 0)$ se propageant à l'interface air/métal (ligne rouge pointillée sur la Fig. 5.15(a)). Nous avons ensuite reporté l'inverse de la transmission sur la Fig. 5.15(b). Comme dans le cas 1D, on retrouve des modulations de $1/T(\sigma)$ lorsque la relation de dispersion du mode $A(-1, 0)$ se propageant à l'interface air/or croise les relations de dispersion des modes se propageant à l'interface GaAs/or. Les modulations de $1/T(\sigma)$ présentent des variations marquées pouvant atteindre un facteur 1.5 entre deux extrema consécutifs de $1/T$, comme par exemple dans la gamme $\sigma = 0.57 - 0.59 \mu\text{m}^{-1}$. Remarquons que les variations de $1/T$ par rapport à σ sont bien plus rapides que celles obtenues avec les cristaux plasmoniques 1D.

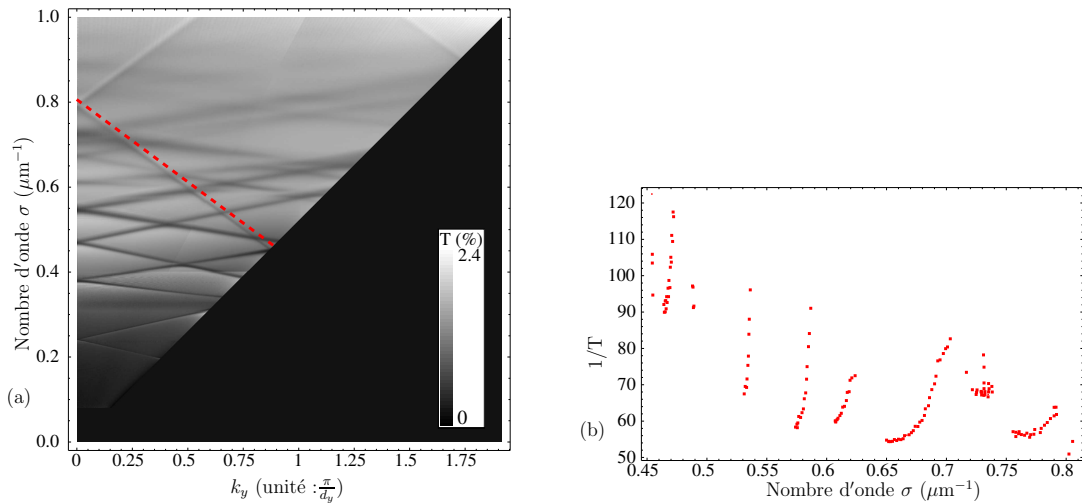


FIG. 5.15 – (a) Mesure du diagramme de transmission à travers le réseau de trous représenté sur la Fig. 5.12 en fonction du vecteur d'onde k_y et du nombre d'onde σ . (b) Inverse de la transmission $1/T(\sigma)$ relevée le long du maximum de transmission du mode $(-1, 0)$ (ligne rouge pointillée sur (a)).

Dans le cas des guides plasmoniques nanostructurés 1D, les modifications des pertes se produisaient à l'intersection des relations de dispersion des plasmons de

surface se propageant sur chaque interface et quelque soit le sens de propagation. Les résultats présentés ici montrent que ce phénomène reste encore valable même si les directions de propagation des plasmons de surface se propageant aux interfaces Air/or et GaAs/or ne sont pas les mêmes.

Nous avons vérifié que les modulations de la transmission se produisent également pour le mode $A(-1, 0)$ de la Fig. 5.13. Ces résultats expérimentaux confirment la modification des propriétés radiatives des modes de surface grâce au couplage des plasmons de surface se propageant sur les deux interfaces du cristal plasmonique.

On remarque que les cristaux plasmoniques 2D anisotropes présentent davantage de relations de dispersion dans les diagrammes de transmission par rapport aux guides plasmoniques nanostructurés 1D. Le changement d'indice pour passer d'un régime à faible perte à un régime radiatif serait alors bien plus faible.

5.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons caractérisé des cristaux plasmoniques 2D anisotropes épais et minces, constitués d'un film métallique percé de trous carrés selon un motif rectangulaire. Nous avons étudié les diagrammes de transmission (mesurés et calculés) en fonction de la polarisation (TE/TM) et le long des deux axes principaux (k_x et k_y) de ces réseaux. Nous avons interprété les diagrammes de transmission mesurés à l'aide des calculs électromagnétiques. Nous avons ainsi pu décrire les différents modes de plasmons de surface excités sur les interfaces air/métal et substrat/métal de ces structures.

Nous avons notamment mis en évidence un phénomène de couplage entre plusieurs plasmons de surface se propageant sur une même interface d'un cristal plasmonique 2D anisotrope. Sa particularité est de mettre en jeu trois plasmons de surface se propageant dans des directions quasi-orthogonales ($\phi \approx 103^\circ$). Il se manifeste par l'ouverture d'une bande interdite en dehors du centre et des bords de la zone de Brillouin. L'anisotropie offre un degré de liberté supplémentaire pour contrôler la position (k_x, σ) de ce couplage avec les périodes d_x et d_y . L'un des modes couplés étudiés présente alors un fort couplage radiatif et une bande plate. Ces résultats ouvrent de nouvelles perspectives pour augmenter les interactions lumière-matière, la densité d'états et exalter le couplage radiatif.

Au contraire, les résultats expérimentaux obtenus sur des structures de plus faible épaisseur ont montré une disparition de ce phénomène. Une étude complémentaire à la fois théorique et expérimentale est nécessaire pour mieux comprendre le rôle de la taille des trous et de l'épaisseur du film sur les mécanismes de couplage entre les plasmons de surface mis en jeu dans ces structures.

5.4. Conclusion

Par ailleurs, nous avons mis à nouveau en évidence les modulations des pertes radiatives dans les cristaux plasmoniques 2D anisotropes de faibles épaisseurs. Les perspectives de modulations entre les régimes de plasmons de surface à faible perte et radiatif pourraient être plus importantes dans les cristaux plasmoniques 2D grâce à la double périodicité de ces structures.

Conclusion générale

Dans ce manuscrit nous avons étudié expérimentalement et théoriquement les propriétés des plasmons de surface sur des films métalliques percés périodiquement (1D ou 2D), et déposés sur un substrat.

Nous avons développé un procédé de fabrication permettant la réalisation des guides plasmoniques nanostructurés 1D et 2D en or d'épaisseur ajustable sur un substrat de GaAs, sur une surface de $2 \times 2 \text{ mm}^2$. Les développements technologiques ont permis d'obtenir une excellente homogénéité, une très faible rugosité, et d'éliminer l'emploi d'une couche d'accroche entre l'or et le GaAs qui aurait augmenté les pertes par absorption dans ces structures.

L'étude expérimentale des guides plasmoniques nanostructurés a été réalisée par des mesures de transmission de la lumière résolues angulairement et spectralement. Nous avons développé à cet effet un banc de caractérisation optique utilisant un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier qui permet de travailler du visible au moyen infrarouge ($\lambda = 0.5 - 12 \text{ }\mu\text{m}$) avec une excellente résolution spectrale (jusqu'à $2.10^{-6} \text{ }\mu\text{m}^{-1}$). Grâce à une optique de focalisation, nous contrôlons la résolution angulaire avec un angle de convergence ($\Delta\theta$) de la lumière pouvant descendre à $\Delta\theta = \pm 0.3^\circ$ sur une surface de diamètre 1.7 mm. Ces conditions expérimentales (large domaine spectral et angulaire, haute résolution spectrale et angulaire) permettent de caractériser finement les résonances de plasmons de surface dans les diagrammes de transmission, et ainsi d'observer les relations de dispersion des plasmons de surface dans les réseaux métalliques, et une signature des variations de leur couplage radiatif.

L'étude des diagrammes de transmission expérimentaux des **guides plasmoniques nanostructurés 1D de faible épaisseur** s'est appuyée à la fois sur le calcul de la transmission et sur le calcul des modes des plasmons de surface. Cela a permis de révéler une modification du couplage radiatif pour le plasmon de surface

se propageant à l'interface air/métal du guide. Ce phénomène résulte du couplage entre ce plasmon et celui de l'interface substrat/métal. Nous avons mis ainsi en évidence deux régimes de propagation dans les guides plasmoniques nanostructurés 1D.

L'excitation des deux modes de surface permet d'augmenter le couplage radiatif avec l'espace libre. Cela se traduit par une augmentation de l'émission de lumière et une diminution de la longueur de propagation du plasmon de surface air/métal. C'est ce que nous avons appelé le *régime radiatif*, dans lequel les pertes par absorption dans le métal jouent un rôle négligeable.

Au contraire l'influence du plasmon de surface métal/substrat peut induire une diminution des pertes radiatives du plasmon de surface air/métal et augmenter la longueur de propagation le long des guides plasmoniques nanostructurés par rapport au régime radiatif. La longueur de propagation des plasmons de surface est alors limitée principalement par les pertes par absorption dans le métal (très peu de pertes radiatives). C'est ce que nous avons appelé un *régime faible perte*.

Ainsi dans cette structure, le guidage de la lumière le long du réseau par le plasmon de surface air/métal est contrôlé par le plasmon de surface substrat/métal. Le couplage entre ces deux modes permet de contrôler la propagation et l'émission de la lumière. Les deux régimes de propagation apparaissent à des fréquences bien déterminées qui correspondent à l'intersection des courbes de dispersion de chaque mode. On sait que ces dernières dépendent de la période (d) du réseau métallique et de l'indice (n) du diélectrique. Ces deux paramètres permettent de positionner les deux régimes de propagation dans les diagrammes de dispersion. Cela offre un moyen de contrôler la longueur de propagation en fonction de la longueur d'onde de la lumière dans les guides plasmoniques nanostructurés.

En étudiant l'influence de ces paramètres (d, n) nous avons notamment montré que le régime de propagation pouvait être modifié avec l'indice du substrat. En particulier nous avons montré qu'une variation de $\delta n/n \approx 1\%$ permettait de passer d'un régime radiatif à un régime faible perte. Ce résultat ouvre la voie à un contrôle externe du régime de propagation des plasmons de surface avec des substrats dont la fonction diélectrique change sous une excitation optique ou électrique. C'est par exemple le cas des semiconducteurs dans le domaine moyen infrarouge et THz où la variation de l'indice optique avec le dopage peut être grande.

Nous avons également présenté une étude de la dispersion des plasmons de surface dans les **cristaux plasmoniques 2D anisotropes (épais et minces)**. Dans ces structures, l'anisotropie résulte de périodes (d_x, d_y) différentes dans les deux axes principaux des cristaux plasmoniques.

Nous avons tout d'abord mesuré les diagrammes de transmission $T(k, \sigma)$ suivant les deux axes principaux des réseaux épais et pour les deux polarisations. Une description des relations de dispersion a permis d'identifier les différents modes de plasmons de surface excités sur les interfaces air/métal et substrat/métal, et de décrire en détail leurs propriétés (symétries, directions de propagation).

Nous avons mis en évidence un couplage entre trois plasmons de surface se propageant à l'interface air/métal. Ce phénomène se traduit par l'ouverture d'une bande interdite à l'intersection des courbes de dispersion (anti-croisement). Celle-ci a la particularité d'être en dehors du centre et des bords de la zone de Brillouin contrairement aux réseaux 2D isotropes ($d_x = d_y$). Les périodes (d_x et d_y) des guides 2D anisotropes permettent de positionner ce couplage dans les diagrammes de dispersion. De plus, l'un des modes couplés étudiés présente une forte transmission et une courbe de dispersion plate. Cela traduit un fort couplage radiatif et une faible vitesse de groupe.

Par ailleurs, l'étude des structures anisotropes plus fines a mis en évidence une disparition de ce phénomène. Les influences de taille des trous et d'épaisseur du métal n'ont pas pu être quantifiées pour expliquer ces observations. On a pu néanmoins noter une modulation des pertes radiatives lorsque les plasmons de surface de chaque interface se couplent, comme dans le cas des guides plasmoniques nanostructurés 1D. Ces modulations sont liées à l'intersection des courbes de dispersion dans les diagrammes de dispersion.

Le mécanisme de couplage entre plasmons de surface mis en évidence dans dans les guides plasmoniques nanostructurés 1D de faibles épaisseurs ouvre la voie vers un contrôle actif de la propagation de lumière en modifiant l'indice optique au voisinage du réseau. La poursuite de ce travail pourrait porter sur l'étude du contrôle électrique du régime de propagation avec des structures à puits quantiques placées directement sous le réseau et en se servant par exemple du métal comme électrode.

Annexe A

Relation de dispersion d'un plasmon de surface

On présente le calcul de la relation de dispersion d'un plasmon de surface. Il s'agit d'un mode se propageant à l'interface entre un métal et un diélectrique. Les plasmons de surface sont des ondes évanescentes polarisées TM, *i.e.* avec un champ magnétique perpendiculaire au plan d'incidence.

Soit une interface entre un milieu diélectrique ϵ_1 et métallique ϵ_2 représentés sur la Fig. A.1. Une onde incidente A_i se propageant dans le milieu diélectrique est réfléchiée à l'interface 1/2, et on note cette onde A_r . Les deux ondes sont alors liées par $A_r = r_{12}A_i$ où r_{12} désigne le coefficient de réflexion sur l'interface 1/2.

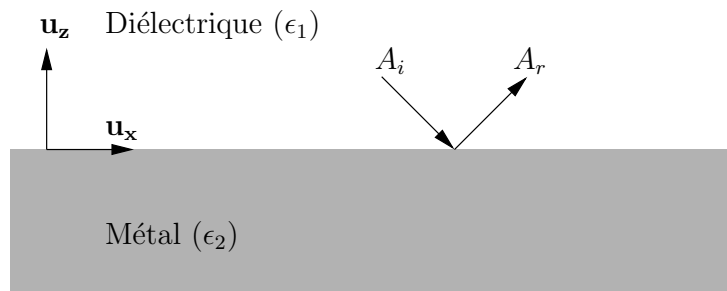


FIG. A.1 – L'onde incidente A_i est réfléchiée à l'interface 1/2 et est notée A_r . Les fonctions diélectriques des deux milieux sont ϵ_1 et ϵ_2 .

Le mode d'un système S est défini par l'existence d'une onde sortante de ce système en absence d'excitation. Dans la situation représentée sur la Fig. A.1, on a donc $A_r \neq 0$ avec $A_i = 0$, *i.e.* $|r_{12}|^{-1} = 0$.

On considère que les ondes A_i et A_r sont des ondes planes monochromatiques se propageant respectivement dans les directions des vecteurs d'onde $\mathbf{k}_i = (k_{x1}, 0, k_{z1})$ et $\mathbf{k}_r = (k_{x1}, 0, -k_{z1})$. Le coefficient de réflexion r_{12} sur l'interface 1/2 s'exprime en polarisation TM :

$$r_{12} = \frac{\frac{k_{z1}}{\epsilon_1} - \frac{k_{z2}}{\epsilon_2}}{\frac{k_{z1}}{\epsilon_1} + \frac{k_{z2}}{\epsilon_2}}. \quad (\text{A.1})$$

La condition $|r_{12}|^{-1} = 0$ donne alors :

$$\frac{k_{z1}}{\epsilon_1} + \frac{k_{z2}}{\epsilon_2} = 0. \quad (\text{A.2})$$

L'éq. A.2 admet une solution en polarisation TM dès lors que $-\text{Re}(\epsilon_2) > \text{Re}(\epsilon_1)$. C'est le cas des métaux dans le proche et moyen infrarouge.

Les composantes du vecteur d'onde sont liées par la relation :

$$k_{z1} = \sqrt{\epsilon_1 k_0^2 - k_{x1}^2}. \quad (\text{A.3})$$

En injectant l'éq. A.3 dans l'éq. A.2, on trouve la relation de dispersion d'un plasmon de surface à l'interface 1/2 :

$$k_{spp} = \frac{k_0}{\sqrt{\frac{1}{\epsilon_1} + \frac{1}{\epsilon_2}}}, \quad (\text{A.4})$$

avec $k_0 = \omega/c$ le vecteur d'onde de la lumière dans le vide.

Annexe B

Indices optiques

B.1 Modèle de Drude pour l'or

Les propriétés optiques d'un métal peuvent être décrits par une constante diélectrique complexe $\epsilon(\omega)$ qui dépend de la fréquence. Dans le modèle de Drude, ces propriétés sont déterminées par le mouvement des électrons de conduction dans le métal. Soumis à un champ électrique \mathbf{E} les électrons se déplacent sous l'effet d'une force de Lorentz $-e\mathbf{E}$ et subissent une force de frottement suite aux collisions avec les autres électrons libres du métal. L'équation de mouvement des électrons sous l'effet d'un champ électrique harmonique (d'amplitude \mathbf{E}_0 et de fréquence ω) est alors donnée par :

$$m_e \frac{\partial^2 \mathbf{r}}{\partial t^2} + m_e \gamma \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} = e \mathbf{E}_0 \exp(-i\omega t) \quad (\text{B.1})$$

avec e et m_e la charge et la masse effective de l'électron libre. γ est un terme d'amortissement inversement proportionnel au temps moyen τ_c entre deux collisions d'électrons. La solution de l'éq. B.1 est celle d'un oscillateur harmonique amorti $\mathbf{r} = \mathbf{r}_0 \exp(-i\omega t)$ avec $\mathbf{r} = -e/(m_e \omega^2 + i m_e \omega \gamma) \mathbf{E}_0$. Ce déplacement d'électron crée un moment dipolaire dipolaire $\mathbf{p} = -e\mathbf{r}$. En cumulant les effets des moments dipolaires individuels de tous les électrons, on détermine le vecteur polarisation $\mathbf{P} = N_e \mathbf{p}$ où N_e est la densité d'électrons par unité de volume :

$$\mathbf{P} = \frac{N_e e^2}{m_e} \frac{1}{(\omega^2 + i\omega\gamma)} \mathbf{E} \quad (\text{B.2})$$

$$= \epsilon_0 \chi_e \mathbf{E} \quad (\text{B.3})$$

B.1. Modèle de Drude pour l'or

où ϵ_0 est la constante diélectrique du vide et χ_e la susceptibilité électrique.

Le vecteur déplacement \mathbf{D} est lié à \mathbf{E} et \mathbf{P} par les équations constitutives $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \epsilon_0 \epsilon \mathbf{E}$ [109]. On déduit alors l'expression de la fonction diélectrique du métal :

$$\epsilon = 1 + \chi_e \quad (\text{B.4})$$

$$= 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma} \quad (\text{B.5})$$

où $\omega_p = \sqrt{(ne^2)/(\epsilon_0 m_e)}$ est la fréquence plasma.

Pour les modélisations électromagnétiques, nous avons déterminé les constantes ω_p et γ afin d'approcher les résultats expérimentaux rassemblés dans la référence [82] dans la gamme de longueurs d'onde $\lambda = 1 - 10 \mu\text{m}$. Les parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique calculées avec $\omega_p = 1.29 \times 10^{16} \text{s}^{-1}$ et $\gamma = 1.14 \times 10^{14} \text{s}^{-1}$ sont représentées dans la Fig. B.1 accompagné des données expérimentales de la référence [82].

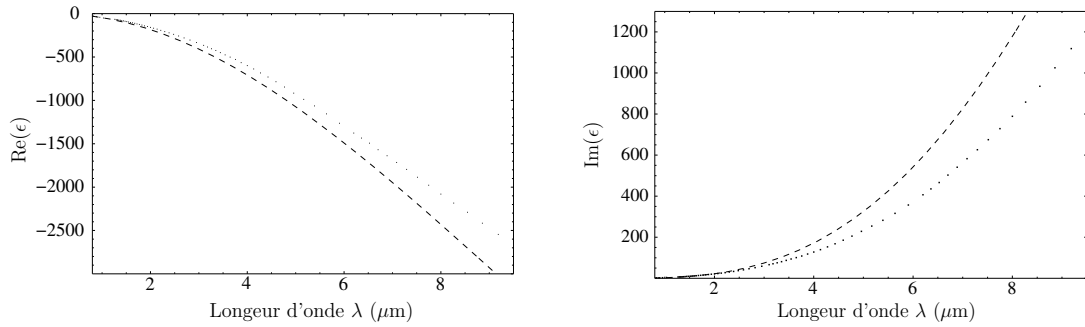


FIG. B.1 – Comparaison des parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique du métal modélisées par un modèle de Drude avec (trait discontinu) et extraits des données expérimentales [82] (points).

B.2 Indice du GaAs

Le GaAs est un semi-conducteur absorbant pour des longueurs d'onde inférieure à 900 nm. Au delà de cette longueur d'onde, il se modélise par une indice réel donné par la formule de Sellmeier [83] :

$$n_{\text{GaAs}}(E_n) = \sqrt{7.1 + \frac{3.78}{1 - 0.180E_n^2} - \frac{1.97}{(30.08E_n)^2 - 1}} \quad (\text{B.6})$$

où $E_n = hc/(e\lambda)$ est l'énergie d'un photon en électron-Volt. L'indice du GaAs est tracé dans la Fig. B.2 en fonction de la longueur d'onde dans le proche et moyen infrarouge.

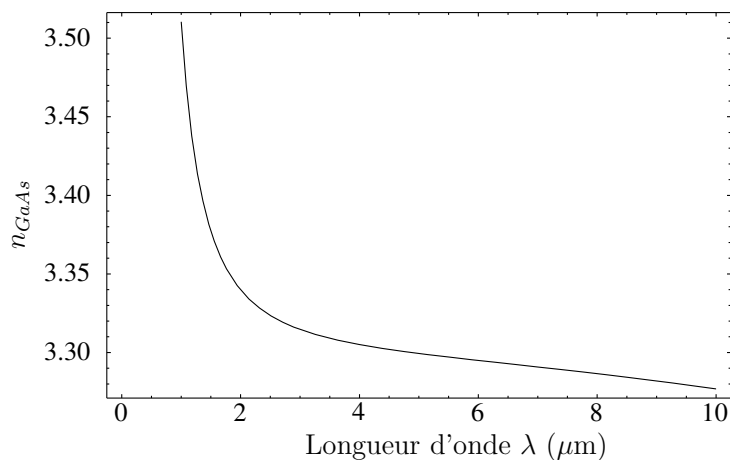


FIG. B.2 – Indice du GaAs en fonction de la longueur d'onde dans le proche et moyen infrarouge ($hc/e = 1.24\text{eV}\cdot\mu\text{m}$).

Plus récemment, Skauli et *al.* ont mesuré l'indice du GaAs entre $0.97 \mu\text{m}$ et $17 \mu\text{m}$ en fonction de la température du semiconducteur [84]. La formule donnée par les auteurs sur l'indice du GaAs montre alors un excellent accord avec celle de Sellmeier.

Annexe C

Modes du film métallique

C.1 Équation des modes du film métalliques

On considère un film métallique d'épaisseur h entre deux milieux diélectriques de permittivité ϵ_1 et ϵ_3 (Fig. C.1). Cette structure est un guide plasmonique dont les propriétés sont rappelées dans cette annexe.

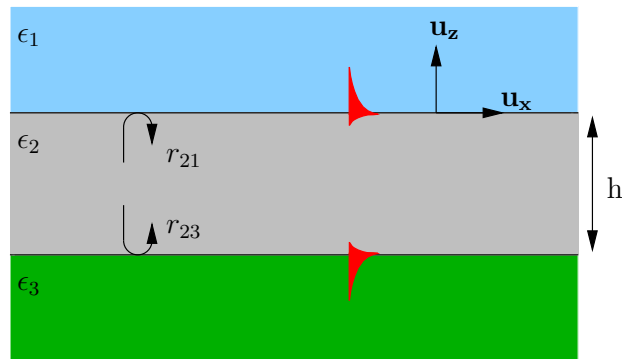


FIG. C.1 – Représentation schématique du film métallique et des plasmons de surface mis en jeu dans les modes guidés par la structure.

Les modes guidés par la film métallique obéissent à :

$$r_{21}r_{23} \exp(2ik_z h) = 1. \quad (\text{C.1})$$

En remplaçant dans l'éq. C.1, les expressions des coefficients de réflexion en polarisation TM (eq. A.1), on obtient l'équation des modes :

$$\left(\frac{k_{z2}}{\epsilon_2} + \frac{k_{z1}}{\epsilon_1}\right) \left(\frac{k_{z2}}{\epsilon_2} + \frac{k_{z3}}{\epsilon_3}\right) - \left(\frac{k_{z2}}{\epsilon_2} - \frac{k_{z1}}{\epsilon_1}\right) \left(\frac{k_{z2}}{\epsilon_2} - \frac{k_{z3}}{\epsilon_3}\right) \exp(2ik_{z2}h) = 0. \quad (\text{C.2})$$

C.2 Film métallique épais

Remarquons que dans le cas d'un film métallique épais, le terme de propagation devient négligeable ($|\exp(2ik_{z2}h)| \ll 1$) et l'équation des modes se simplifie :

$$\left(\frac{k_{z2}}{\epsilon_2} + \frac{k_{z1}}{\epsilon_1}\right) \left(\frac{k_{z2}}{\epsilon_2} + \frac{k_{z3}}{\epsilon_3}\right) = 0. \quad (\text{C.3})$$

Il existe alors deux solutions à l'éq. C.3 qui correspondent aux plasmons de surface se propageant sans couplage le long des interfaces 1/2 et 2/3.

C.3 Film métallique mince

C.3.1 Cas symétrique ($\epsilon_1 = \epsilon_3$)

Pour les films métalliques symétriques, l'équation des modes (C.2) se simplifie :

$$\left(\frac{k_{z2}}{\epsilon_2} + \frac{k_{z1}}{\epsilon_1}\right) \pm \left(\frac{k_{z2}}{\epsilon_2} - \frac{k_{z1}}{\epsilon_1}\right) \exp(ik_{z2}h) = 0. \quad (\text{C.4})$$

Il existe deux solutions de modes guidées par le film métallique en fonction du signe “ \pm ” dans l'éq. C.4. Les plasmons de surface se propageant sur chaque interface du film métallique se couplent et donnent lieu à deux modes dont la symétrie du champ est différente. L'un d'eux a un champ magnétique H_y antisymétrique par rapport au plan de symétrie de la structure : c'est le mode “Long Range Surface Plasmon Polariton” (LRSP). L'autre mode couplé a un champ magnétique H_y symétrique et correspond au “Short Range Surface Plasmon Polariton” (SRSP) (cf. Fig. 1.9).

Nous avons recherché les solutions de l'éq. C.4 pour un film métallique en or entouré d'air, en faisant varier l'épaisseur du métal et à la longueur d'onde $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$. Le modèle de Drude est utilisé avec les paramètres données dans l'annexe B.1.

Les Figs. C.2 montrent les longueurs de propagation et d'atténuation du champ dans l'air pour le mode LRSP. Pour les grandes épaisseurs, les plasmons de surface

de chaque interface sont découplés et ont les mêmes propriétés que sur une interface plane. En diminuant l'épaisseur du substrat, l'intensité du champ diminue dans le métal et s'étale d'avantage dans les milieux diélectriques. Les pertes deviennent alors de plus en plus faibles.

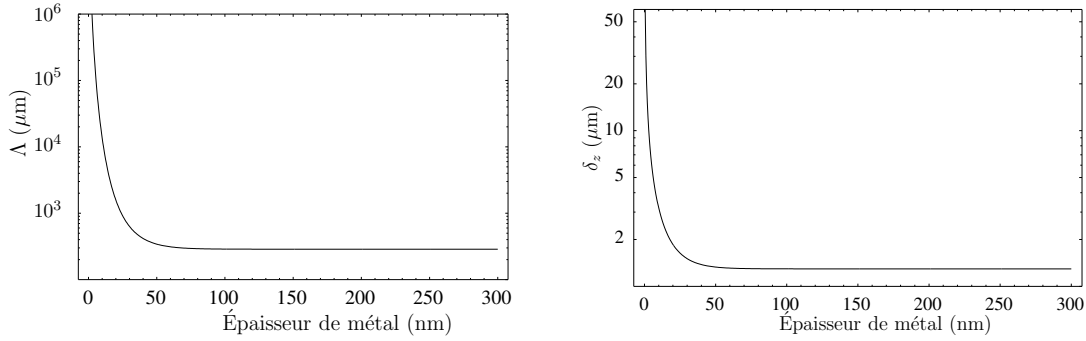


FIG. C.2 – Longueur de propagation Λ et confinement du mode δ_z en fonction de l'épaisseur de métal pour un plasmon de surface se propageant le long d'un film d'or plongé dans l'air à $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$.

Les longueurs de propagation et d'atténuation du mode SRSP sont représentées dans les Figs. C.3. Dans ce cas, la diminution de l'épaisseur du film permet de confiner le mode vers le métal. Les pertes par absorption augmentent et la longueur de propagation chute rapidement en avec l'épaisseur du film.

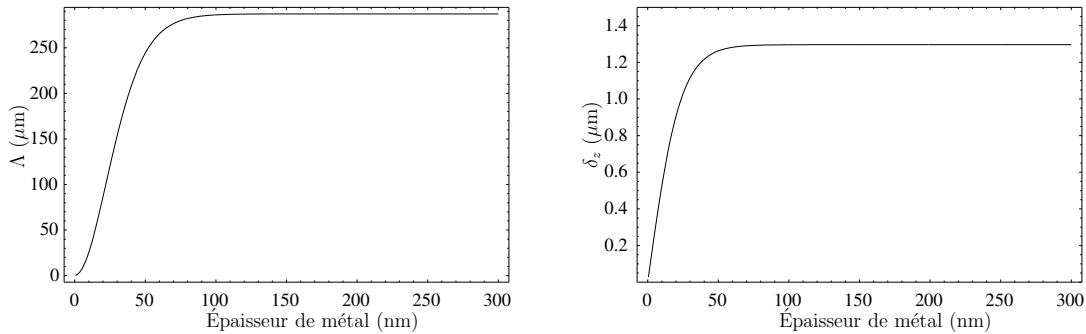


FIG. C.3 – Longueur de propagation Λ et confinement du mode δ_z en fonction de l'épaisseur de métal pour un plasmon de surface se propageant le long d'un film d'or plongé dans l'air à $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$.

Ces deux exemples mettent en évidence le compromis entre longueur de propagation et confinement dans les structures symétriques. Il est possible d'obtenir de grandes longueurs de propagation (supérieures au cm) par rapport au cas de l'interface plane, mais ceci se fait au détriment du confinement.

C.3.2 Cas asymétrique ($\epsilon_1 < \epsilon_3$)

Dans le cas asymétrique, les modes se propageant sur chaque interface ont des vitesses et atténuations différentes. En se couplant, ils donnent lieu à deux modes guidés présentés dans ce paragraphe. Nous avons recherché les solutions de l'éq. C.2 pour un film métallique en or déposé sur un substrat de GaAs semi-infini et plongé dans l'air, pour différentes épaisseurs de métal et à la longueur d'onde $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$. Les constantes diélectriques des deux milieux 1 et 3 sont $\epsilon_1 = 1$ et $\epsilon_3 = 3.5^2$, et le modèle de Drude est utilisé avec les paramètres donnés dans l'annexe B.1.

Le film métallique supporte soit un mode de plasmon de surface se propageant à l'interface or/GaAs et ne pénétrant quasiment pas dans l'air, ou soit un mode se propageant à l'interface air/or mais qui pénètre et fuit dans le substrat de GaAs par couplage radiatif à travers le métal. Ces deux modes sont respectivement appelés mode non-radiatif et mode radiatif.

La longueur de propagation et le confinement du mode non-radiatif sont donnés dans les Figs. C.4. Aux grandes épaisseurs les longueurs de propagation et le confinement correspondent aux valeurs attendues pour un plasmon de surface se propageant à l'interface de l'or et du GaAs. En diminuant l'épaisseur du film, la diminution de la longueur de propagation met en évidence l'augmentation des pertes du système. Or l'énergie du mode ne s'échappe pas dans l'air et la longueur d'atténuation dans le GaAs diminue avec l'épaisseur de métal : on constate donc une augmentation des pertes dues à l'absorption dans le métal quand l'épaisseur du film diminue.

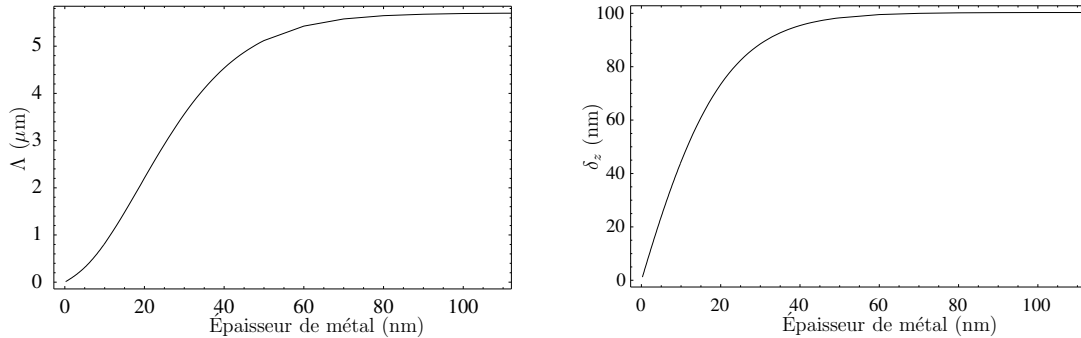


FIG. C.4 – Longueur de propagation Λ et confinement δ_z du mode en fonction de l'épaisseur de métal pour un plasmon de surface se propageant à l'interface substrat/or à $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$.

Les longueurs de propagation et d'atténuation du mode radiatif sont données dans les Figs. C.5. Comme pour le mode non-radiatif, le comportement aux grandes épaisseurs est identique à celui d'un plasmon de surface se propageant le long de l'interface air/or. En diminuant l'épaisseur du métal, le couplage radiatif du plasmon de surface dans le substrat augmente les pertes du système, et diminue de la longueur

de propagation. Pour des épaisseurs très faibles, le plasmon de surface pénètre de moins en moins dans le métal ce qui diminue les pertes par absorption. Cela se traduit par une légère augmentation de la longueur de propagation.

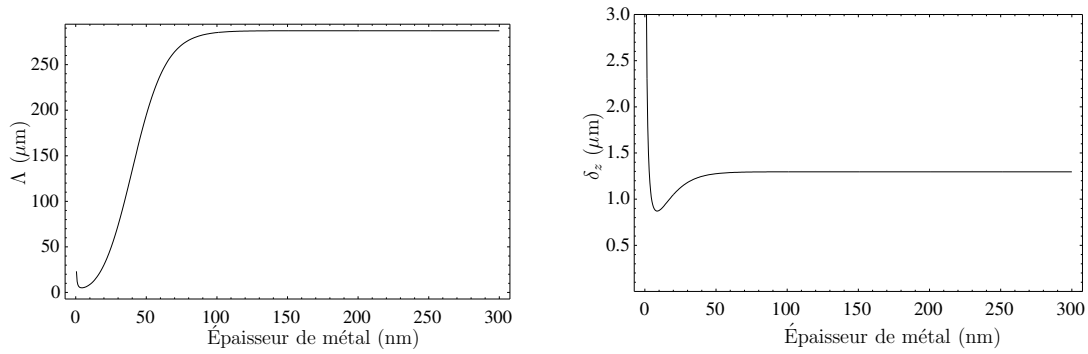


FIG. C.5 – Longueur de propagation Λ et confinement δ_z du mode en fonction de l'épaisseur de métal pour un plasmon de surface se propageant à l'interface air/or et fuyant dans le substrat de GaAs à $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$.

Références bibliographiques

- [1] *Chemistry : Before striking gold in gold-ruby glass.*
Wagner (F. E.), Haslbeck (S.), Stievano (L.), Calogero (S.), Pankhurst (Q. A.)
et Martinek (K.-P.). *Nature*, 407(6805), pp. 691–692, 12 octobre 2000.
- [2] *Surface plasmon subwavelength optics.*
Barnes (W. L.), Dereux (A.) et Ebbesen (T. W.). *Nature*, 424, p. 824, 14 août
2003.
- [3] *Light in tiny holes.*
Genet (C.) et Ebbesen (T. W.). *Nature*, 445, pp. 39–46, 4 janvier 2007.
- [4] *Plasmonics : Merging Photonics and Electronics at Nanoscale Dimensions.*
Ozbay (E.). *Science*, 311, p. 189, 13 janvier 2006.
- [5] *Negative refractive index metamaterials.*
Padilla (W. J.), Basov (D. N.) et Smith (D. R.). *Materials Today*, 9, pp. 28–35,
1 juillet 2006.
- [6] *Optical negative-index metamaterials.*
Shalaev (V.M.). *Nature Photonics*, 1, p. 41, janvier 2007.
- [7] *Plasma Losses by Fast Electrons in Thin Films.*
Ritchie (R. H.). *Phys. Rev.*, 106(5), p. 874, 1957.
- [8] Raether (H.) (édité par). – *Surface plasmons.* – Berlin, Springer, 1988.
- [9] *Surface-enhanced spectroscopy.*
Moskovits (M.). *Rev. Mod. Phys.*, 57(3), pp. 783 – 826, juillet 1985.
- [10] *Surface plasmon resonance sensors based on diffraction gratings and prism
couplers : sensitivity comparison.*
Homola (J.), Koudelab (I.) et Yeea (S. S.). *Sen. Act. B : Chem*, 54(1-2), pp.
16–24, 25 janvier 1999.
- [11] *Advances in surface plasmon resonance biosensor analysis.*
Rich (R. L) et Myszka (D. G.). *Curr. Opin. Biotech.*, 11(1), pp. 54–61, 1
février 2000.

- [12] *Ultra-high resolution long range surface plasmon-based sensor.*
Slavik (R.) et Homola (J.). *Sen. Act. B : Chem*, 123(1), pp. 10–12, 10 avril 2007.
- [13] *A Multistep Chemical Modification Procedure To Create DNA Arrays on Gold Surfaces for the Study of Protein-DNA Interactions with Surface Plasmon Resonance Imaging.*
Brockman (J. M.), Frutos (A. G.) et Corn (R. M.). *J. Am. Chem. Soc.*, 125(35), pp. 8044–8051, 19 août 1999.
- [14] *Kinetic analysis of monoclonal antibody-antigen interactions with a new biosensor based analytical system.*
Karlsson (R.), Michaelsson (A.) et Mattsson (L.). *J. Immunol. Meth*, 145(1-2), pp. 229–240, 15 décembre 1991.
- [15] *Real-time biospecific interaction analysis using surface plasmon resonance and a sensor chip technology.*
Jonsson (U.), Fagerstam (L.), Ivarsson (B.), Johnsson (B.), Karlsson (R.), Lundh (K.), Lafas (S.), Persson (B.), Roos (H.), Rannberg (I.), Sjolander (S.), Stenberg (E.), Stahlberg (R.), Urbaniczky (C.), Ostlin (H.) et Malmqvist (M.). *BioTechniques*, 11(5), pp. 620–627, novembre 1991.
- [16] *A new type of secondary radiation.*
Raman (C. V.) et Krishnan (K. S.). *Nature*, 121, p. 501, 1928.
- [17] *Surface-Plasmon-Mediated Single-Molecule Fluorescence Through a Thin Metallic Film.*
Stefani (F. D.), Vasilev (K.), Bocchio (N.), Stoyanova (N.) et Kreiter (M.). *Phys. Rev. Lett.*, 94, p. 023005, 21 janvier 2005.
- [18] *Enhancement of Single-Molecule Fluorescence Detection in Subwavelength Apertures.*
Rigneault (H.), Capoulade (J.), Dintinger (J.), Wenger (J.), Bonod (N.), Popov (E.), Ebbesen (T. W.) et Lenne (P-F.). *Phys. Rev. Lett.*, 95, p. 117401, 6 septembre 2005.
- [19] *Surface Plasmon Mediated Emission from Organic Light-Emitting Diodes.*
Hobson (P.A.), Wedge (S.), Wasey (J.A.E.), Sage (I.) et Barnes (W.L.). *Adv. Mat.*, 14(19), p. 1393, 2 octobre 2002.
- [20] *Surface plasmon enhanced light-emitting diode.*
Vuckovic (J.), Loncar (M.) et Scherer (A.). *IEEE J. Quantum Electron.*, 36(10), p. 1131, 2000.
- [21] *Coupled surface plasmon-polariton mediated photoluminescence from a top-emitting organic light-emitting structure.*

- Wedge (S.), Wasey (J. A. E.), Barnes (W. L.) et Sage (I.). *Appl. Phys. Lett.*, 85(2), p. 182, 2004.
- [22] *Surface-plasmon-enhanced light emitters based on InGaN quantum wells.*
Okamoto (K.), Niki (I.), Shvartser (A.), Narukawa (Y.), Mukai (T.) et Scherer (A.). *Nature Materials*, 3(9), pp. 601–605, 22 août 2004.
- [23] *Light-emitting devices : Turning the tables on surface plasmons.*
Barnes (W. L.). *Nature Materials*, 3(9), pp. 588–589, septembre 2004.
- [24] *Energy Transfer Across a Metal Film Mediated by Surface Plasmon Polaritons.*
Andrew (P.) et Barnes (W. L.). *Science*, 306, pp. 1002–1005, 5 novembre 2004.
- [25] *Highly directional radiation generated by a tungsten thermal source.*
Laroche (M.), Arnold (C.), Marquier (F.), Carminati (R.), Greffet (J.-J.), Collin (S.), Bardou (N.) et Pelouard (J.-L.). *Opt. Lett.*, 30(19), p. 2623, octobre 2005.
- [26] *Coherent emission of light by thermal sources.*
Greffet (J.-J.), Carminati (R.), Joulain (K.), Mulet (J-P), Mainguy (S.) et Chen (Y.). *Nature*, 416, p. 61, 7 mars 2002.
- [27] *Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation : Quantum Generation of Coherent Surface Plasmons in Nanosystems.*
Bergman (D. J.) et Stockman (M. I.). *Phys. Rev. Lett.*, 90, p. 027402, 2003.
- [28] *Stimulated Emission of Surface Plasmons at the Interface between a Silver Film and an Optically Pumped Dye Solution.*
Seidel (J.), Grafstrom (S.) et Eng (L.). *Phys. Rev. Lett.*, 94, p. 177401, 6 mai 2005.
- [29] *The quantum cascade laser. A device based on two-dimensional electronic subbands.*
Sirtori (C.), Faist (J.), Capasso (F.) et Cho (A. Y.). *P. and Appl. Opt. : J. Eur. Opt. Soc. A*, 7(2), pp. 373–381, mars 1998.
- [30] *Long-wavelength (1.8 - 11.5 mm) semiconductor lasers with waveguides based on surface plasmons.*
Sirtori (C.), Gmachl (C.), Capasso (F.), Faist (J.), Sivco (D. L.), Hutchinson (A. L.) et Cho (A. Y.). *Opt. Lett.*, 23(17), p. 1366, 1998.
- [31] *High-performance operation of single-mode terahertz quantum cascade lasers with metallic gratings.*
Mahler (L.), Tredicucci (A.), Kohler (R.), Beltram (F.), Beere (H. E.), Linfield (E. H.) et Ritchie (D. A.). *Appl. Phys. Lett.*, 87, p. 181101, 31 octobre 2005.
- [32] *Long-Range Surface-Plasma Waves on Very Thin Metal Films.*
Sarid (D.). *Phys. Rev. Lett.*, 47(26), pp. 1927–1930, 1981.

- [33] *Surface-polariton-like waves guided by thin, lossy metal films.*
Burke (J. J.), Stegeman (G. I.) et Tamir (T.). *Phys. Rev. B*, 33, p. 5186, 1986.
- [34] *Demonstration of integrated optics elements based on long-ranging surface plasmon polaritons.*
Charbonneau (R.), Lahoud (N.), Mattiussi (G.) et Berini (P.). *Optics Express*, 13(3), pp. 977–984, 7 février 2005.
- [35] *Surface plasmon polariton based modulators and switches operating at telecom wavelengths.*
Nikolajsen (T.), Leosson (K.) et Bozhevolnyi (S. I.). *Appl. Phys. Lett.*, 85(24), pp. 5833–5835, 13 décembre 2004.
- [36] *Plasmon-polariton waves guided by thin lossy metal films of finite width : Bound modes of symmetric structures.*
Berini (P.). *Phys. Rev. B*, 61(15), p. 10484, 2000.
- [37] *Optical transmission on metallic wires-fundamental modes.*
Al-Bader (S.J.). *IEEE J. Quantum Electron.*, 40(3), pp. 325–329, mars 2004.
- [38] *Leaky and bound modes of surface plasmon waveguides.*
Zia (R.), Selker (M. D.) et Brongersma (M. L.). *Phys. Rev. B*, 71, p. 165431, 26 avril 2005.
- [39] *Integrated Optical Components Utilizing Long-Range Surface Plasmon Polaritons.*
Boltasseva (A.), Nikolajsen (T.), Leosson (K.), Kjaer (K.), Larsen (M. S.) et Bozhevolnyi (S. I.). *J. Lighthwave Technol.*, 23(1), pp. 413–422, 1 janvier 2005.
- [40] *Plasmon-polariton waves guided by thin lossy metal films of finite width : Bound modes of asymmetric structures.*
Berini (P.). *Phys. Rev. B*, 63, p. 125417, 2001.
- [41] *Experimental observation of plasmon polariton waves supported by a thin metal film of finite width.*
Charbonneau (R.), Berini (P.), Berolo (E.) et Lisicka-Shrzek (E.). *Opt. Lett.*, 25(11), p. 844, 2000.
- [42] *Surface plasmon propagation in microscale metal stripes.*
Lamprecht (B.), Krenn (J. R.), Schider (G.), Ditlbacher (H.), Salerno (M.), Felidj (N.), Leitner (A.), Aussenegg (F. R.) et Weeber (J. C.). *Appl. Phys. Lett.*, 79(1), p. 51, 2 juillet 2001.
- [43] *Near-field observation of surface plasmon polariton propagation on thin metal stripes.*
Weeber (J.-C.), Krenn (J. R.), Dereux (A.), Lamprecht (B.), Lacroute (Y.) et Goudonnet (J. P.). *Phys. Rev. B*, 64, p. 045411, 2001.

- [44] *Near-field observation of evanescent light wave coupling in subwavelength optical waveguides.*
Quidant (R.), Weeber (J.-C.), Dereux (A.), Peyrade (D.), Chen (Y.) et Girard (C.). *Europhys. Lett.*, 57(2), p. 191, 2002.
- [45] *Optical near-field distributions of surface plasmon waveguide modes.*
Weeber (J.-C.), Lacroute (Y.) et Dereux (A.). *Phys. Rev. B*, 68, p. 115401, 2003.
- [46] *Silver Nanowires as Surface Plasmon Resonators.*
Ditlbacher (H.), Hohenau (A.), Wagner (D.), Kreibig (U.), Rogers (M.), Hofer (F.), Aussenegg (F. R.) et Krenn (J. R.). *Phys. Rev. Lett.*, 95, p. 257403, 16 décembre 2005.
- [47] *Dielectric stripes on gold as surface plasmon waveguides.*
Steinberger (B.), Hohenau (A.), Ditlbacher (H.), Stepanov (A. L.), Drezet (A.), Aussenegg (F. R.), Leitner (A.) et Krenn (J. R.). *Appl. Phys. Lett.*, 88(9), p. 094104, 28 février 2006.
- [48] *Surface-Plasmon-Assisted Guiding of Broadband Slow and Subwavelength Light in Air.*
Karalis (A.), Lidorikis (E.), Ibanescu (M.), Joannopoulos (J. D.) et Soljacic (M.). *Phys. Rev. Lett.*, 95, p. 063901, 2 août 2005.
- [49] *Metal-clad optical waveguides : analytical and experimental study.*
Kaminow (. P.), Mammel (W. L.) et Weber (H. P.). *Appl. Opt.*, 13(2), p. 396, février 1974.
- [50] *Waveguiding in nanoscale metallic apertures.*
Collin (S.), Pardo (F.) et Pelouard (J.-L.). *Optics Express*, 15(7), pp. 4310–4320, 2 avril 2007.
- [51] *Squeezing Visible Light Waves into a 3-nm-Thick and 55-nm-Long Plasmon Cavity.*
Miyazaki (H. T.) et Kurokawa (Y.). *Phys. Rev. Lett.*, 96, p. 097401, 7 mars 2006.
- [52] *Metal-insulator-metal plasmon nanocavities : analysis of optical properties.*
Kurokawa (Y.) et Miyazaki (H. T.). *Phys. Rev. B*, 75(3), p. 035411, 12 janvier 2007.
- [53] *All-Angle Negative Refraction for Surface Plasmon Waves Using a Metal-Dielectric-Metal Structure.*
Shin (H.) et Fan (S.). *Phys. Rev. Lett.*, 96, p. 073907, 24 février 2006. – Erratum PRL96-239903.pdf.

- [54] *Negative Refraction at Visible Frequencies.*
Lezec (H. J.), Dionne (J. A.) et Atwater (H. A.). *Science*, 316(5823), p. 430, 20 avril 2007.
- [55] *Channel Plasmon-Polariton Guiding by Subwavelength Metal Grooves.*
Bozhevolnyi (S. I.), Volkov (V. S.), Devaux (E.) et Ebbesen (T. W.). *Phys. Rev. Lett.*, 95, p. 046802, 22 juillet 2006.
- [56] *Channel polaritons.*
Novikov (I. V.) et Maradudin (A. A.). *Phys. Rev. B*, 66(3), p. 035403, Jun 2002.
- [57] *Channel plasmon-polaritons : modal shape, dispersion, and losses.*
Moreno (E.), Garcia-Vidal (F. J.), Rodrigo (S. G.), Martin-Moreno (L.) et Bozhevolnyi (S.I.). *Opt. Lett.*, 31(23), pp. 3447–3449, 1 décembre 2006.
- [58] *Theoretical and experimental investigation of strongly localized plasmons on triangular metal wedges for subwavelength waveguiding.*
Pile (D. F. P.), Ogawa (T.), Gramotnev (D. K.), Okamoto (T.), Haraguchi (M.), Fukui (M.) et Matsuo (S.). *Appl. Phys. Lett.*, 87(6), p. 061106, 8 août 2005.
- [59] *Squeezing the Optical Near-Field Zone by Plasmon Coupling of Metallic Nanoparticles.*
Krenn (J. R.), Dereux (A.), Weeber (J. C.), Bourillot (E.), Lacroute (Y.), Goudonnet (J. P.), Schider (G.), Gotschy (W.), Leitner (A.), Aussenegg (F. R.) et Girard (C.). *Phys. Rev. Lett.*, 82(12), p. 2590, 1999.
- [60] *Plasmonics : Localization and guiding of electromagnetic energy in metal/dielectric structures.*
Maier (S. A.) et Atwater (H. A.). *J. Appl. Phys.*, 98, p. 011101, 1 juillet 2005.
- [61] *Dielectric stripes on gold as surface plasmon waveguides : bends and directional couplers.*
Steinberger (B.), Hohenau (A.), Ditlbacher (H.), Aussenegg (F. R.), Leitner (A.) et Krenn (J. R.). *Appl. Phys. Lett.*, 91(8), p. 081111, 22 août 2007.
- [62] *Two-dimensional optics with surface plasmon polaritons.*
Ditlbacher (H.), Krenn (J. R.), Schider (G.), Leitner (A.) et Aussenegg (F. R.). *Appl. Phys. Lett.*, 81(10), pp. 1762–1764, 2 septembre 2002.
- [63] *Dielectric optical elements for surface plasmons.*
Hohenau (A.), Krenn (J.R) et Stepanov (A.L.). *Opt. Lett.*, 30(8), pp. 893–895, avril 2005.
- [64] *Near-field characterization of Bragg mirrors engraved in surface plasmon waveguides.*

- Weeber (J-C.), Lacroute (Y.), Dereux (A.), Devaux (E.), Ebbesen (T.), Girard (C.), González (M. U.) et Baudrion (A-L.). *Phys. Rev. B*, 70, p. 235406, 6 décembre 2004.
- [65] *Channel plasmon subwavelength waveguide components including interferometers and ring resonators.*
Bozhevolnyi (S. I.), Volkov (V. S.), Devaux (E.), Laluet (J-Y.) et Ebbesen (T. W.). *Nature*, 440(7083), pp. 508–511, 23 mars 2006.
- [66] *Launching and decoupling surface plasmons via micro-gratings.*
Devaux (E.), Ebbesen (T. W.), Weeber (J-C.) et Dereux (A.). *Appl. Phys. Lett.*, 83(24), p. 4936, 2003.
- [67] *All-optical modulation by plasmonic excitation of CdSe quantum dots.*
Pacifici (D.), Lezec (H. J.) et Atwater (H. A.). *Nature Photonics*, 1, pp. 402 – 406, 2 juillet 2007.
- [68] *Plasmonic interconnects versus conventional interconnects : a comparison of latency, crosstalk and energy costs.*
Conway (J.A.), Sahni (S.) et Szkopek (T.). *Optics Express*, 15(8), pp. 4474–4484, 3 avril 2007.
- [69] *On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum.*
Wood (R. W.). *Philos. Mag.*, 4, pp. 396–402, septembre 1902.
- [70] *On the dynamical theory of gratings.*
Rayleigh (Lord). *Proceedings of the Royal Society of London*, A 79, pp. 399–416, 1907.
- [71] *Diffraction gratings with controlled groove form and abnormal distribution of intensity.*
Wood (R. W.). *Philos. Mag.*, 23, pp. 310–317, février 1912.
- [72] *Anomalous diffraction gratings.*
Wood (R. W.). *Phys. Rev.*, 48, pp. 928–936, 1935.
- [73] *The theory of anomalous diffraction gratings and of quasi-stationary waves on metallic surfaces (sommerfeld's waves).*
Fano (U.). *J. Opt. Soc. Am.*, 31, pp. 213–222, 1941.
- [74] *A new theory of wood's anomalies on optical gratings.*
Hessel (A.) et Oliner (A. A.). *Appl. Opt.*, 4(10), pp. 1275–1297, 1965.
- [75] *Quantitative theoretical study of the plasmon anomalies of diffraction gratings.*
Maystre (D.) et Neviere (M.). *J. Opt.*, 8, pp. 165–174, 1977.
- [76] *Transmission resonances on metallic gratings with very narrow slits.*
Porto (J. A.), Garcia-Vidal (F. J.) et Pendry (J. B.). *Phys. Rev. Lett.*, 83(14), p. 2845, 1999.

- [77] *Strong discontinuities in the complex photonic band structure of transmission metallic gratings.*
Collin (S.), Pardo (F.), Teissier (R.) et Pelouard (J-L.). *Phys. Rev. B*, 63, p. 033107, 2001.
- [78] *Exact eigenfunctions for square-wave gratings : application to diffraction and surface-plasmon calculations.*
Sheng (P.), Stepleman (R. S.) et Sanda (P. N.). *Phys. Rev. B*, 26(6), pp. 2907–2916, 1982.
- [79] *The finitely conducting lamellar diffraction grating.*
Botten (L. C.), Craig (M. S.), McPhedran (R. C.), Adams (J. L.) et Andrewartha (J. R.). *Opt. Acta*, 28(8), pp. 1087–1102, 1981.
- [80] Collin (S.). – *Résonances photoniques dans les réseaux métalliques : théorie et application à la photodétection ultrarapide.* – Thèse de PhD, 25 juillet 2003.
- [81] *Resonant-cavity-enhanced subwavelength metal-semiconductor-metal photodetector.*
Collin (S.), Pardo (F.) et Pelouard (J-L.). *Appl. Phys. Lett.*, 83(8), pp. 1521–1523, 2003.
- [82] Palik (E. D.) (édité par). – *Handbook of Optical Constants of Solids.* – Academic, Orlando, 1985.
- [83] *GaAs, AlAs, and Al_xGa_{1-x}As Material parameters for use in research and device applications.*
Adachi (S.). *J. Appl. Phys.*, 58, p. R1, 1 avril 1985.
- [84] *Improved dispersion relations for gaas and applications to nonlinear optics.*
Skauli (T.), Kuo (P. S.), Vodopyanov (K. L.), Pinguet (T. J.), Levi (O.), Eyres (L. A.), Harris (J. S.), Fejer (M. M.), Gerard (B.), Becouarn (L.) et Lallier (E.). *J. Appl. Phys.*, 94(10), pp. 6447–6455, 15 novembre 2003.
- [85] *Photonic gaps in the dispersion of surface plasmons on gratings.*
Barnes (W. L.), Preist (T. W.), Kitson (S. C.), Sambles (J. R.), Cotter (N. P. K.) et Nash (D. J.). *Phys. Rev. B*, 51(16), p. 11164, 1995.
- [86] *Physical origin of photonic energy gaps in the propagation of surface plasmons on gratings.*
Barnes (W. L.), Preist (T. W.), Kitson (S. C.) et Sambles (J. R.). *Phys. Rev. B*, 54(9), pp. 6227–6244, 1 septembre 1996.
- [87] *Full Photonic Band Gap for Surface Modes in the Visible.*
Kitson (S. C.), Barnes (W. L.) et Sambles (J. R.). *Phys. Rev. Lett.*, 77(13), p. 2670, 1996.

- [88] *Effects of Configuration Interaction on Intensities and Phase Shifts.*
Fano (U.). *Phys. Rev.*, 124(6), p. 1866, 1961.
- [89] *Understanding the Fano resonance through toy models.*
Bandopadhyay (S.), Dutta-Roy (B.) et Mani (H. S.). *Am. J. Phys.*, 72(12), p. 1501, décembre 2004.
- [90] Maystre (D.). – *Electromagnetic Surface Modes*, chap. 17. – New-York, Wiley, 1982.
- [91] *Horizontal and vertical surface resonances in transmission metallic gratings.*
Collin (S.), Pardo (F.), Teissier (R.) et Pelouard (J-L.). *J. Opt. A (Special Issue on Electromagnetic Optics)*, 4(5), pp. S154–S160, 2002.
- [92] *Single-mode surface-plasmon laser.*
Tredicucci (A.), Gmachl (C.), Capasso (F.), Hutchinson (A. L.), Sivco (D. L.) et Cho (A. Y.). *Appl. Phys. Lett.*, 76(16), p. 2164, 2000.
- [93] *GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum cascade lasers.*
Sirtori (C.), Kruck (P.), Barbieri (S.), Collot (P.), Nagle (J.), Beck (M.), Faist (J.) et Oesterle (U.). *Appl. Phys. Lett.*, 73(24), p. 3486, 14 décembre 1998.
- [94] *Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays.*
Ebbesen (T. W.), Lezec (H. J.), Ghaemi (H. F.), Thio (T.) et Wolff (P. A.). *Nature*, 391, p. 667, 1998.
- [95] *Surface plasmons enhance optical transmission through subwavelength holes.*
Ghaemi (H. F.), Thio (T.), Grupp (D. E.), Ebbesen (T. W.) et Lezec (H. J.). *Phys. Rev. B*, 58, p. 6779, 1998.
- [96] *Theory of diffraction by small holes.*
Bethe (H. A.). *Phys. Rev.*, 66, pp. 163–182, 1944.
- [97] *Theory of extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays.*
Martin-Moreno (L.), Garcia-vidal (F. J.), Lezec (H. J.), Pellerin (K. M.), Thio (T.), Pendry (J. B.) et Ebbesen (T. W.). *Phys. Rev. Lett.*, 86(6), p. 1114, 2001.
- [98] *Surface-plasmon-enhanced transmission through hole arrays in cr films.*
Thio (T.), Ghaemi (H. F.), Lezec (H. J.), Wolff (P. A.) et Ebbesen (T. W.). *J. Opt. Soc. Am. B*, 16(10), pp. 1743–1748, 1999.
- [99] *Crucial role of metal surface in enhanced transmission through subwavelength apertures.*
Grupp (D. E.), Lezec (H. J.), Ebbesen (T. W.), Pellerin (K. M.) et Thio (T.). *Appl. Phys. Lett.*, 77(11), pp. 1569–1571, 2000.
- [100] *Strong Influence of Hole Shape on Extraordinary Transmission through Periodic Arrays of Subwavelength Holes.*

- Klein Koerkamp (K. J.), Enoch (S.), Segerink (F. B.), Van Hulst (N. F.) et Kuipers (L.). *Phys. Rev. Lett.*, 92, p. 183901, 2004.
- [101] *Influence of hole size on the extraordinary transmission through subwavelength hole arrays.*
van der Molen (K. L.), Segerink (F. B.), van Hulst (N. F.) et Kuipers (L.). *Appl. Phys. Lett.*, 85(19), pp. 4316–4318, 8 novembre 2004.
- [102] *Role of shape and localized resonances in extraordinary transmission through periodic arrays of subwavelength holes : Experiment and theory.*
van der Molen (K. L.), Klein Koerkamp (K. J.), Enoch (S.), Segerink (F. B.), van Hulst (N. F.) et Kuipers (L.). *Phys. Rev. B*, 72, p. 045421, 12 juillet 2005.
- [103] *The role of localized surface plasmon modes in the enhanced transmission of periodic subwavelength apertures.*
Degiron (A.) et Ebbesen (T. W.). *J. Opt. A*, 7(2), pp. S90–S96, février 2005.
- [104] *Surface Plasmon Polaritons and Their Role in the Enhanced Transmission of Light through Periodic Arrays of Subwavelength Holes in a Metal Film.*
Barnes (W. L.), Murray (W. A.), Dintinger (J.), Devaux (E.) et Ebbesen (T. W.). *Phys. Rev. Lett.*, 92, p. 107401, 2004.
- [105] *Surface plasmons of metallic surfaces perforated by nanohole arrays.*
Lalanne (P.), Rodier (J.C.) et Hugonin (J.P.). *J. Opt. A*, 7, pp. 422–426, 15 juillet 2005.
- [106] *Fano-type interpretation of red shifts and red tails in hole array transmission spectra.*
Genet (C.), van Exter (M.P.) et Woerdman (J.P.). *Opt. Comm.*, 225, p. 331, 2003.
- [107] *Perturbative approach for surface plasmon effects on flat interfaces periodically corrugated by subwavelength apertures.*
Lalanne (P.), Sauvan (C.), Hugonin (J. P.), Rodier (J. C.) et Chavel (P.). *Phys. Rev. B*, 68, p. 125404, 2003.
- [108] *New formulation of the Fourier modal method for crossed surface-relief gratings.*
Li (L.). *J. Opt. Soc. Am. A*, 14(10), p. 2758, octobre 1997.
- [109] Jackson (J.D.). – *Classical electrodynamics.* – John Wiley & Sons, 1999, troisième édition.

Abstract

This thesis is devoted to the study of waveguiding properties of surface plasmons polaritons (group velocity, radiative coupling, absorption) on 1D and 2D plasmonic crystals composed of a metallic film periodically drilled with nanoscaled apertures (slits or holes). We have developed a setup for the measurements of optical transmission and reflexion on large spectral (1-16 μm) and angular ($0 - 60^\circ$) ranges. It allows to obtain dispersion diagrams with a high resolution ($\pm 0.3^\circ$, 0.5 cm^{-1}).

In 1D plasmonic crystals, we evidence modulations of radiative losses, due to the coupling between surface plasmons propagating along air/metal and substrate/metal interfaces. It induces two propagation regimes : a *radiative regime* with negligible absorption, and a *low-loss regime* nearly uncoupled to the free space. Moreover we show that we can continuously tune the propagation regime with a slight modification of the optical index of the substrate (1%). It opens up new perspectives for the external control of radiative/non-radiative coupling of guiding modes.

We also present the dispersion properties of surface plasmons on 2D anisotropic plasmonic crystals with different periods along the two symmetry axes. We reveal a band gap far from the borders of the first Brillouin zone. It is induced by the coupling of three surface plasmons propagating in nearly orthogonal directions. One of these coupled modes presents a strong radiative coupling and a weak group velocity.

Keywords : Plasmonic crystals, waveguide, surface plasmons polaritons, radiative/non-radiative losses.

Résumé

Ce travail de thèse porte sur l'étude des propriétés de guidage des polaritons-plasmons de surface (vitesse de groupe, couplage radiatif, absorption) dans des cristaux plasmoniques 1D et 2D constitués de films métalliques percés d'ouvertures nanométriques périodiques (fentes ou trous). Nous avons développé un banc de mesures optiques (transmission et réflexion) sur un large domaine angulaire ($0 - 60^\circ$) et spectral ($1-16 \mu\text{m}$). Il permet d'obtenir les diagrammes de dispersion des modes de surface avec une haute résolution ($\pm 0.3^\circ$, 0.5 cm^{-1}).

Dans les cristaux plasmoniques 1D, nous montrons une modulation des pertes radiatives due au couplage des plasmons de surface se propageant le long des interfaces air/métal et substrat/métal. Il en résulte deux régimes de propagation : un *régime radiatif* présentant une absorption négligeable, et un *régime faible perte* très peu couplé à l'espace libre. De plus nous montrons qu'une faible variation de l'indice du substrat (1%) permet de passer d'un régime de propagation à un autre et ouvre la voie à un contrôle externe des couplages radiatifs et non radiatifs des modes guidés.

Nous présentons également les propriétés dispersives des plasmons de surface excités sur les interfaces de cristaux plasmoniques 2D anisotropes ayant des périodes différentes selon ses deux axes de symétrie. Nous montrons l'existence d'une bande interdite loin des bords de la zone de Brillouin, et mettant en jeu un couplage entre trois plasmons de surface se propageant dans des directions quasi-orthogonales. Un des modes couplés présente un fort couplage radiatif et une faible vitesse de groupe.

Mot-clés : Cristaux plasmoniques, guide d'onde, polaritons-plasmons de surface, pertes radiatives/non-radiatives.