



HAL
open science

Transmission exaltée à travers des tamis à photons à ouvertures annulaires nanométriques : simulation et caractérisation

Y. Poujet

► **To cite this version:**

Y. Poujet. Transmission exaltée à travers des tamis à photons à ouvertures annulaires nanométriques : simulation et caractérisation. Physique [physics]. Université de Franche-Comté, 2007. Français. NNT: . tel-00293093

HAL Id: tel-00293093

<https://theses.hal.science/tel-00293093>

Submitted on 3 Jul 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.



Université de Franche-Comté

École Doctorale SPIM

Thèse de Doctorat

Spécialité : Sciences pour l'ingénieur

présentée par

Yannick POUJET

Transmission exaltée à travers des tamis
à photons à ouvertures annulaires
nanométriques : simulation et
caractérisation.

Thèse dirigée par Fadi Issam BAIDA et Jérôme SALVI

soutenue le 14 décembre 2007 devant la commission d'examen :

- Président : Daniel VAN LABEKE, Professeur, Université de Franche-Comté
- Rapporteurs : Stefan ENOCH, Chargé de recherche, HDR, Institut Fresnel, Marseille
Jean-Claude WEEBER, Professeur, Université de Bourgogne
- Examineurs : Gilles PARENT, Maître de Conférences, Université Henri Poincaré, Nancy
Christian SEASSAL, Chargé de Recherche, École Centrale de Lyon
Jean-Marie VIGOUREUX, Professeur, Université de Franche-Comté
Fadi Issam BAIDA, Professeur, Université de Franche-Comté
Jérôme SALVI, Maître de Conférences, Université de Franche-Comté

Pour toute ma famille, avec tout mon amour.

*À mes parents qui m'ont permis d'être ce que je suis,
à ma femme et mes enfants qui me permettent d'être ce que je suis.*

Remerciements

Ce travail a été effectué au sein du département d'optique P.M. DUFFIEUX de l'Institut FEMTO-ST de Besançon.

De nombreuses personnes doivent être remerciées ici car elles ont contribué à ce que ce travail puisse arriver à son but. Certaines ne seront pas citées involontairement aussi je m'en excuse platement auprès d'elles. Mais pour d'autres...

Je remercie M. Daniel VAN LABEKE pour avoir accepté de présider mon jury de soutenance, ainsi que pour son soutien au cours de ces années de travail. Je remercie chaleureusement M. Jean-Claude WEEBER et M. Stefan ENOCH de m'avoir fait l'honneur d'être les rapporteurs de mon travail de thèse. Que soient également remerciés chaleureusement M. Gilles PARENT et M. Christian SEASSAL pour leur présence dans mon jury de soutenance. J'adresse un remerciement sincère à M. Jean-Marie VIGOUREUX pour sa présence lors de ma soutenance, mais également pour la passion qu'il a su me communiquer pour l'étude des phénomènes physiques, et donc pour la recherche. Un grand merci à toutes ces personnes.

Ce travail ne serait jamais arrivé à son terme sans l'aide précieuse de mes encadreurs : M. Jérôme SALVI et M. Fadi BAIDA. Je les en remercie grandement. Qu'ils sachent qu'ils sont devenus pour moi plus que des encadreurs...

Je remercie M. Hervé MAILLOTTE, directeur du département, ainsi que M. Eric LANTZ, directeur de l'école doctorale, de m'avoir permis de mener à bien ce travail. Je remercie toutes les personnes du département d'optique, en particulier celles de l'équipe Nano-Optique, pour leur aide, leurs discussions, leur soutien dans les instants pénibles et pour tous les bons moments que nous avons pu partager. Citons ici dans un ordre tout à fait aléatoire : Céline, Andreï, Séverine, Mika, Audrey, Kiki, JC, Matthieu, Abder, Viginie, Rémi, Julien, Benattou, Thierry, Emile, Anne, Romain, Armand et tous les visiteurs du bureau -113 B...

Je remercie également mes collègues de l'Institut Universitaire de Technologie de Vesoul, en particulier Fréd, Dominique et Marie. Que ces personnes sachent qu'elles sont chères à mes yeux...

Je remercie fortement Vincent et Dominique, deux amis trop loin, deux amis très proches...

Je remercie mes parents, et Olivier et Laure pour avoir toujours eu confiance en moi.

Enfin, les mots de remerciements ne sont pas assez grands, ni forts pour exprimer ce que m'apporte ma propre famille en terme de joie et de réconfort. Que Magali et mes enfants sachent à quel point je les aime...

Résumé

Depuis quelques années, la communauté scientifique internationale s'intéresse fortement aux transmissions exaltées de la lumière à travers des films métalliques nanostructurés (ou « tamis à photons ») dans le domaine du visible et de l'infra-rouge. Ces tamis à photons offrent en effet de nombreuses applications dans le domaine de la nanophotonique (microscopie, fluorescence, SERS, génération de second harmonique, lithographie, filtrage, modulation...). Dans ce travail de thèse, nous proposons d'utiliser comme nano-structure une matrice d'ouvertures annulaires percées dans un film opaque d'or ou d'argent. Ce type de cavités coaxiales rend possible l'excitation d'un mode guidé qui permet d'atteindre des transmissions nettement supérieures (90%) à celles obtenues par des tamis à photons basés sur des résonances plasmons.

L'étude théorique utilise une méthode numérique basée sur les différences finies dans le domaine temporel pour résoudre les équations de Maxwell. L'influence des paramètres géométriques (diamètre intérieur et extérieur des ouvertures, période de la matrice, épaisseur du film métallique) et de la nature du métal est ainsi étudiée de façon à optimiser la configuration et d'obtenir une forte transmission dans le domaine du visible. Une cartographie du champ à l'intérieur des cavités ainsi qu'à la surface du métal est également calculée afin de caractériser l'exaltation du champ à l'intérieur des cavités et de déterminer la nature du mode guidé.

Ce travail théorique s'appuie sur des caractérisations expérimentales effectuées en champ proche et en champ lointain. L'étude en champ proche a permis de cartographier le champ électrique au voisinage immédiat des ouvertures annulaires : la structure expérimentale met en évidence le rôle fondamental du mode TE_{11} dans l'exaltation de la transmission. Parallèlement, des spectres expérimentaux obtenus en champ lointain confirment, pour un film d'argent, une transmission d'environ 90% en parfait accord avec les prévisions théoriques. Ce résultat constitue, à notre connaissance, une première mondiale et offre de nombreuses perspectives quant aux applications possibles de tels tamis à photons à ouvertures annulaires.

Abstract

Extraordinary optical transmission through optically thick metallic films milled by nanometric apertures is receiving a continuously growing attention from the scientific community. This kind of nanostructures offers many applications in nano-photonics, microscopy, fluorescence, SERS, second harmonic generation, lithography. In this thesis, we propose to enhance the transmission thanks to annular apertures. Indeed, this new geometry allows the excitation of a guided mode inside the cavity. This mode is responsible for a large transmission much higher than the one mediated by surface plasmon resonance.

The theoretical study uses a numerical method based on a Finite Difference Time Domain algorithm. It consists in the direct resolution of the Maxwell's equations by discretizing both space and time. The geometrical parameters (inner and outer diameters, period, metal thickness) and the metal nature have been optimized in order to obtain a large transmission in the visible range. Moreover, the electromagnetic field has been calculated inside the cavity and just above the surface to identify the guided mode.

Near and far-field experiments have been carried out to characterize these structures. The experimental results are in good agreement with the theoretical predictions. The near-field study exhibits the fundamental role of the TE_{11} guided mode in the large transmission. One of the most striking results reported in this work is a transmission in the visible range up to 90% through a silver film engraved with annular nano-apertures. To our knowledge, we demonstrate here for the very first time an extraordinary optical transmission in the visible range with an efficiency as high as 90%.

Table des matières

Remerciements	v
Résumé	vii
Abstract	ix
Table des matières	xi
Table des figures	xv
Liste des tableaux	xxiii
Introduction	1
1 État de l'art sur les transmissions extraordinaires optiques	5
1.1 Introduction	5
1.2 Transmission extraordinaire assistée par plasmons	7
1.2.1 Un peu de théorie sur les plasmons	7
1.2.2 Transmission de la lumière à travers des nano-ouvertures	10
1.3 Théorie sur les modes guidés dans une cavité annulaire	13
1.3.1 Hypothèses de travail	13
1.3.2 Calcul des modes	15
1.3.3 Modes de cavité	18
1.4 Travaux sur les structures annulaires	22
1.5 Conclusion	26
2 Outil numérique pour la simulation des nano-structures	29
2.1 Introduction	29
2.2 Position et hypothèses de travail	30
2.3 Méthode numérique : Finite Difference Time Domain	33

2.3.1	L'algorithme de Yee	33
2.3.2	Conditions de bords : couches absorbantes	40
2.4	Modèles de dispersion des métaux	43
2.4.1	Modèles de Drude et de Drude-Lorentz	44
2.4.2	Description de l'or : méthode des accumulateurs récursifs	47
2.5	Applications	50
2.5.1	Exemples de spectre de transmission	50
2.5.2	Influence de la période	53
2.5.3	Influence des diamètres	55
2.5.4	Influence de l'épaisseur de la couche métallique	56
2.5.5	Influence du substrat	57
2.5.6	Influence de la polarisation du faisceau incident	57
2.6	Conclusion	58
3	Résultats expérimentaux	65
3.1	Introduction	65
3.2	Fabrication des structures	66
3.2.1	Préparation de la couche métallique	66
3.2.2	Fabrication par lithographie électronique	68
3.2.3	Gravure par faisceau ionique	71
3.2.4	Approche qualitative	73
3.3	Caractérisation RSNOM	75
3.3.1	Rappels sur la microscopie champ proche	76
3.3.2	Schéma expérimental	78
3.3.3	Résultats expérimentaux	81
3.4	Caractérisation SNOM	84
3.4.1	Schéma expérimental	84
3.4.2	Influence de la longueur d'onde	84
3.4.3	Influence de la polarisation	86
3.5	Spectres de transmission de la lumière à travers des structures annulaires	89
3.5.1	Description du schéma expérimental	89
3.5.2	Résultats obtenus	92
3.6	Conclusion	97
4	Perspectives	99
4.1	Introduction	99
4.2	Transmission au-delà de la longueur d'onde de coupure	100

4.2.1	Position du problème	100
4.2.2	Spectres FDTD	103
4.3	Tamis à photons et génération de second harmonique	108
4.4	Exaltation de champ pour l'étude de la fluorescence	110
4.5	Transmission exaltée par le mode TEM	110
4.6	Conclusion	112
	Conclusion	115
	Bibliographie	117

Table des figures

1.1	Deux configurations pour l'excitation de plasmons de surface : celle de Otto et celle de Kretschmann.	7
1.2	Propagation de plasmons sur l'interface d'un métal de permittivité ε_m et d'un diélectrique de permittivité ε_1	8
1.3	Schéma d'un réseau lamellaire infini dans lequel p représente la période du réseau, a l'épaisseur de la fente et h la hauteur de la fente.	10
1.4	Perspective d'une coupe transverse d'un trou circulaire de diamètre d entouré par un réseau circulaire de période p	11
1.5	Schéma de la cavité étudiée. Les parois en métal parfait sont séparées par une couche de diélectrique. Un repère en coordonnées cartésiennes et un repère en coordonnées cylindriques orientent l'espace.	13
1.6	Exemple d'intensités lumineuses I dans une cavité annulaire pour les modes guidés correspondants.	22
1.7	Schéma de 2×2 périodes de cavités annulaires.	23
1.8	Transmissions théorique (pointillés) et expérimentale (trait plein) de la matrice d'ouvertures annulaires fabriquée dans une couche de 150 nm d'épaisseur d'or avec un diamètre intérieur égal à 250 nm, un diamètre extérieur de 330 nm et une période de 600 nm. La courbe de gauche représente le premier harmonique du mode de cavité TE_{11} , celle de droite le mode fondamental.	25
1.9	Image obtenue avec un microscope optique classique fonctionnant en transmission des structures étudiées (grossissement : 50). La structure étudiée est indiquée par la flèche. L'intensité enregistrée à travers le triangle donne la référence du spectre expérimental.	25

2.1	Schéma de principe de la structure modélisée par FDTD : h représente l'épaisseur de la couche métallique, p la période suivant les directions x et y , ε_1 la constante diélectrique du substrat, ε_m celle du métal et ε_2 celle du superstrat. La polarisation de l'onde incidente est donnée par l'angle ϕ compté à partir de l'axe des x	30
2.2	Représentation des composantes des champs électriques et magnétiques dans la cellule élémentaire de Yee. Les composantes indiquées sur la figure correspondent à celles de la cellule (i, j, k) ; les autres composantes tracées sur la figure sont celles des cellules adjacentes. La taille de la cellule est donnée par Δx , Δy et Δz respectivement pour les directions x , y et z . . .	34
2.3	Évolution du pas d'incrémentatation dans le plan xy autour de l'objet. . . .	35
2.4	Évolution du pas d'incrémentatation sur la direction z pour permettre une connaissance plus fine de l'évolution du champ électromagnétique autour de la couche métallique. La diminution du pas se fait sur 20 nœuds spatiaux.	35
2.5	Évolution temporelle du calcul des composantes du champ électromagnétique pour une dimension dans l'algorithme de Yee. L'évolution spatiale entre les champs électriques et magnétiques est donnée sur l'axe horizontal; l'évolution temporelle sur l'axe vertical. Dans le cercle, on indique les champs nécessaires pour le calcul du champ en rouge.	36
2.6	Position des couches absorbantes autour de la fenêtre de calcul dans le cadre de la méthode de Bérenger.	41
2.7	Schéma de principe du calcul pour le mode TE du champ électromagnétique dans le milieu absorbant.	41
2.8	Spectre de transmission d'un réseau d'ouvertures circulaires de diamètre 200 nm, de période 350 nm dans une couche d'argent de 100 nm d'épaisseur.	51
2.9	Spectre de transmission d'un réseau d'ouvertures annulaires de diamètre extérieur 200 nm, de diamètre intérieur 100 nm, de période 350 nm dans une couche d'argent de 100 nm d'épaisseur.	52
2.10	Spectre de transmission d'un réseau d'ouvertures circulaires de diamètre 173,2 nm, de période 350 nm dans une couche d'argent de 100 nm d'épaisseur.	53
2.11	Courbes de transmission en fonction de la période pour des structures annulaires dans une couche d'argent de 100 nm d'épaisseur. Les diamètres intérieur et extérieur sont fixés respectivement à 100 nm et 200 nm.	54

2.12	Évolution de la position de la longueur d'onde de coupure en fonction de la variation du diamètre extérieur de la cavité annulaire pour un diamètre intérieur fixé à 100 nm : le diamètre extérieur est égal à 300 nm pour la courbe bleue, 250 nm pour la courbe noire, 230 nm pour la courbe rouge et 200 nm pour la courbe verte.	55
2.13	Évolution de la transmission à travers des films d'argent nanostructurés par des ouvertures annulaires de diamètre intérieur 100 nm, de diamètre extérieur 200 nm et de période 350 nm en fonction de l'épaisseur de la couche métallique. Les pointillés indiquent la position de la longueur d'onde de coupure du mode TE_{11} du guide coaxial infini avec les mêmes dimensions.	60
2.14	Coupe transverse de l'intensité du champ dans la cavité étudiée pour les longueurs d'onde : δ à 440 nm, γ à 525 nm, β à 620 nm et α à 660 nm. Les échelles pour chaque coupe sont logarithmiques.	61
2.15	Évolution de la transmission à travers des films d'argent d'épaisseur 100 nm nanostructurés par des ouvertures annulaires de diamètre intérieur 100 nm, de diamètre extérieur 200 nm et de période 350 nm pour différents substrats d'indice optique : 1 pour la courbe bleue, 1,5 pour la courbe rouge et 2 pour la courbe noire.	61
2.16	Évolution de la transmission à travers des films d'argent d'épaisseur 100 nm nanostructurés par des ouvertures annulaires de diamètre intérieur 100 nm, de diamètre extérieur 200 nm et de période 350 nm avec un substrat de verre pour différentes polarisations incidentes linéaires : 0° , 45° et 60° par rapport à l'axe x défini sur la figure 1.7 à la page 23.	62
2.17	Schéma de la structure en demi-anneau pour l'influence de la polarisation.	63
2.18	Transmission de la lumière à travers des réseaux d'ouverture (a) : semi-annulaire avec un faisceau polarisé suivant x , (b) : semi-annulaire avec un faisceau polarisé suivant y et (c) : annulaire.	63
3.1	Étapes de fabrication de structures annulaires par gravure électronique. (a) : dépôt de résine négative ; (b) : transfert du motif de la structure dans la résine par faisceau électronique ; (c) : développement de la résine non insolée ; (d) : dépôt de la couche métallique et (e) : dissolution de la résine restante dans un bain d'acétone.	69

3.2	Image prise au microscope électronique à balayage de structures annulaires réalisées par lithographie électronique avec les paramètres suivants : diamètre intérieur de 250 nm, diamètre extérieur de 330 nm, période de 600 nm et épaisseur de 150 nm, image réalisée à l'EPFL.	71
3.3	Images prises au microscope électronique de structures annulaires réalisées à l'EPFL par gravure ionique avec les paramètres suivants : diamètre intérieur de 100 nm, diamètre extérieur de 200 nm, période de 350 nm et épaisseur de 100 nm. (a) : vue de quatre structures, (b) : vue avec un angle de 52° et (c) : vue de la matrice complète.	72
3.4	Images prises au microscope électronique de structures annulaires réalisées à l'EPFL par gravure ionique avec les paramètres suivants : diamètre intérieur de 230 nm, diamètre extérieur de 330 nm, période de 500 nm et épaisseur de 100 nm. (a) : vue de quatre structures, (b) : vue avec un angle de 52° et (c) : vue de la matrice complète.	72
3.5	Image prise avec un angle de 40° au microscope électronique de structures annulaires réalisées à la centrale de technologie MIMENTO par gravure ionique avec les paramètres suivants : diamètre intérieur de 100 nm, diamètre extérieur de 200 nm, période de 500 nm et épaisseur de 100 nm.	73
3.6	Caractérisation AFM de matrices d'ouvertures annulaires.	73
3.7	Images des trois structures annulaires obtenues au microscope optique classique fonctionnant en transmission avec un grossissement de 50. La couche d'argent est de 100 nm d'épaisseur et les dimensions sont respectivement diamètre intérieur, diamètre extérieur, période pour la matrice 1 : 100 nm, 200 nm, 350 nm, pour la matrice 2 : 230 nm, 330 nm, 500 nm et pour la matrice 3 : 100 nm, 200 nm, 500 nm.	74
3.8	Courbes théoriques des structures de la figure 3.7. Chaque numéro de courbe correspond à celui de l'image.	75
3.9	Diffraction de la lumière en ondes propagatives et évanescentes par un objet éclairé en réflexion.	76
3.10	Schéma de principe d'un enregistrement à distance constante.	78
3.11	Schéma expérimental de la caractérisation par microscopie optique en champ proche en mode réflexion.	79
3.12	Spectres de transmission des structures annulaires étudiées : (a) pour la structure 1 et (b) pour la structure 2.	80
3.13	Images topographique et optique enregistrées par microscopie optique en champ proche en réflexion de la structure annulaire 1.	80

3.14	Images topographique et optique enregistrées par microscopie optique en champ proche en réflexion de la structure annulaire 2.	81
3.15	(a) : image optique de la figure 3.13 filtrée à l'aide d'une transformée de Fourier ; (b) : agrandissement numérique correspondant à la zone carrée de la figure 3.15(a). La mise en évidence de la forme en « grain de café » du champ électromagnétique à la surface de la structure 1 est nettement visible. Les cercles blancs marquent la position des anneaux.	82
3.16	(a) : image optique de la figure 3.14 filtrée à l'aide d'une transformée de Fourier ; (b) : agrandissement numérique correspondant à la zone carrée de la figure 3.16(a). La mise en évidence de la forme en « grain de café » du champ électromagnétique à la surface de la structure 2 est nettement visible. Les cercles blancs marquent la position des anneaux.	82
3.17	Image théorique du champ électromagnétique au-dessus des structures annulaires possédant la géométrie 1 obtenue par calcul FDTD ($4,5 \times 4,5 \mu\text{m}^2$). La polarisation du champ incident est indiquée par la flèche dans le coin supérieur droit.	83
3.18	Schéma expérimental de microscopie optique en champ proche en mode transmission pour déterminer l'influence de la longueur d'onde et de la polarisation.	85
3.19	Spectre du continuum de lumière blanche utilisé en microscopie optique en champ proche en mode transmission. Les longueurs d'onde étudiées expérimentalement sont signalées sur la courbe.	86
3.20	Photographie du schéma expérimental pour la caractérisation en champ proche optique des matrices d'ouverture annulaire.	87
3.21	Images topographiques et optiques des structures annulaires dans une couche d'argent, enregistrées avec la même polarisation incidente mais à des longueurs d'onde différentes ; de gauche à droite : $\lambda = 578 \text{ nm}$, 608 nm et 622 nm	87
3.22	Transmission théorique entre les longueurs d'onde de 500 nm et 700 nm pour la structure étudiée.	88
3.23	Images topographiques et optiques des structures annulaires dans la couche d'argent, enregistrées à la même longueur d'onde de $\lambda = 622 \text{ nm}$ mais avec des polarisations différentes.	88
3.24	Schéma expérimental pour l'acquisition des spectres de transmission de la lumière à travers les films métalliques nanostructurés.	90

3.25	Spectre du continuum de lumière blanche utilisé pour l'obtention des spectres de transmission.	91
3.26	Mesure de la transmittance en fonction de la surface des références.	92
3.27	Images MEB des structures étudiées (diamètre intérieur 100 nm, diamètre extérieur 200 nm et période 350 nm) dans une couche d'argent de 100 nm d'épaisseur ; (a) : vue de dessus de quelques périodes, (b) : vue inclinée à 40°.	93
3.28	Spectres de transmission, théoriques en bleu, et expérimentaux en rouge, à travers deux structures annulaires possédant les mêmes diamètres intérieur et extérieur (100 nm et 200 nm respectivement) et la même période (350 nm) mais de tailles différentes. Ligne en pointillé bleu : courbe théorique de la structure parfaite ; ligne en trait bleu : courbe théorique obtenue à partir d'une structure donnée par une image enregistrée au microscope électronique. Ligne en pointillé rouge : la matrice possède 30×30 périodes ($\simeq 100 \mu\text{m}^2$) ; ligne en trait rouge : la matrice possède 40×40 périodes ($\simeq 190 \mu\text{m}^2$).	94
3.29	Structure introduite dans notre code FDTD (2×2 périodes) déduite de l'image réalisée au microscope électronique à balayage (figure 3.27).	95
3.30	Spectre de transmission pour différentes directions de polarisation ϕ du champ incident calculé à partir de l'axe x : 0° en trait plein, 10° en trait pointillé, 20° en trait tiret et 30° en trait pointillé-tiret ; (a) : courbes théoriques et (b) : courbes expérimentales.	96
4.1	Schéma de la structure étudiée. La période est notée p , les rayons intérieur et extérieur respectivement R_i et R_e et la hauteur de métal h . La distance entre les deux couches métalliques est d . L_x et L_y représentent les décalages latéraux selon les directions x et y . La structure est illuminée par une onde plane sous incidence normale.	101
4.2	Spectre de transmission d'une couche d'argent nanostructurée avec des structures ayant les paramètres suivants : $p=350$ nm, $R_i=75$ nm, $R_e=100$ nm et $h=100$ nm. La structure est illuminée par une onde plane sous incidence normale.	102
4.3	Evolution du pas d'incrémentations sur la direction z pour permettre une connaissance plus fine de l'évolution du champ électromagnétique autour des couches métalliques.	102

4.4	Spectre de transmission de la structure donnée par la figure 4.1 avec les paramètres géométriques de la couche simple de la figure 4.2. La distance d est égale à 600 nm pour cette figure.	103
4.5	Spectre de transmission de la lumière à travers le système bi-couche en fonction de la distance d entre les couches et la longueur d'onde.	104
4.6	Calcul des coefficients de transmission T en rouge, de réflexion R en noir et d'absorption A en bleu pour une couche en argent de 100 nm d'épaisseur nanostructurée par des structures annulaires avec les paramètres géométriques de la figure 4.2. La finesse F de la double couche est tracée en vert.	106
4.7	Spectre de transmission T^{FP} calculé en fonction de la distance d entre les deux couches et de la longueur d'onde avec la formule analytique 4.1. La distance effective e indiquée tient compte de la distance d entre les deux couches de métal ainsi que de la profondeur de peau e_m dans la couche métallique : $e = d + 2e_m$	107
4.8	Evolution du facteur géométrique e_g en fonction de la longueur d'onde pour une seule couche de métal. La zone grisée indique la zone de longueur d'onde où le facteur prend une valeur négative.	108
4.9	Schéma de principe pour l'obtention d'une génération de second harmonique avec un substrat de niobate de lithium.	109
4.10	Calcul de densité moyenne d'exaltation dans une couche d'argent de 150 nm d'épaisseur sur un substrat de verre : (a) pour une ouverture circulaire de diamètre 200 nm, (b) pour une ouverture annulaire de diamètre intérieur 100 nm et de diamètre extérieur 200 nm. Un film d'eau est placé sur la structure.	111
4.11	Excitation du mode TEM de la cavité réalisée dans une couche de métal parfait : étude de l'influence de la polarisation et de l'angle d'incidence du faisceau d'illumination de la structure. Pour une meilleure lisibilité, les spectres sont décalés de 1 unité entre eux. (a) : spectres de transmission pour une onde d'illumination polarisée TM pour 5 valeurs d'angle d'incidence, (b) : spectres de transmission pour une onde d'illumination polarisée TE pour 5 valeurs d'angle d'incidence. θ représente l'angle d'incidence de la lumière, ϕ l'angle azimutal.	112

Liste des tableaux

1.1	Tableau comparatif de quelques résultats expérimentaux sur les transmissions exaltées.	27
3.1	Tableau des paramètres utilisés pour la gravure des structures annulaires à l'aide de la gravure ionique entre les deux centrales de technologies. . . .	71
3.2	Comparaison entre les deux types de gravure.	72
3.3	Tableau des dimensions des structures imagées sur la figure 3.7. L'épaisseur de la couche d'argent est de 100 nm.	74
3.4	Tableau des dimensions des anneaux testés en champ proche optique en mode réflexion.	78
3.5	Tableau récapitulatif des caractéristiques de la fibre photonique NL.PM.750 utilisée pour la création du continuum de lumière blanche.	90

Liste des abréviations

Pour des raisons de lisibilité, la signification d'une abréviation ou d'un acronyme n'est souvent rappelée qu'à sa première apparition dans le texte d'un chapitre. Par ailleurs, puisque nous utilisons toujours l'abréviation la plus usuelle, il est fréquent que ce soit le terme anglais qui soit employé.

AAA	Annular Aperture Arrays
AFM	Atomic Force Microscope
FDTD	Finite Difference Time Domain
FIB	Focused Ion Beam
GSH	Génération de Second Harmonique
MEB	Microscope Électronique à Balayage
PML	Perfectly Matched Layers
RSNOM	Reflection Scanning Near-field Optical Microscope
SERS	Surface Enhanced by Raman Scattering
SNOM	Scanning Near-field Optical Microscope

Introduction Générale

LES grands défis de la physique moderne se situent dans les infinis : l'infiniment grand et l'infiniment petit. Les progrès réalisés dans ces deux domaines, ainsi que les enjeux économiques, ne cessent de s'accroître. Dans le domaine des petites dimensions, qui nous concerne pour cette thèse, les applications sont de plus en plus nombreuses dans des secteurs aussi variés que la chimie, la médecine ou la biologie. Citons ici quelques avancées majeures. Commençons par les nanotubes de carbone découverts en 1991 par Ijima [1]. Ceux-ci possèdent des propriétés tout à fait étonnantes. D'abord, leur résistance mécanique est supérieure à celle de l'acier pour une masse bien plus petite à cette échelle. De plus, selon leur mode de fabrication, ils peuvent avoir un comportement soit de métaux, soit de semi-conducteurs d'où des applications en électronique importantes comme pour la réalisation de transistors ou pour assurer la connection entre composants. Ensuite, citons la recherche sur les nano-aimants [2]. Elle permet d'envisager l'amélioration de la détection et des diagnostics de certaines pathologies en imagerie par résonance magnétique, mais également de traiter certaines maladies par thérapie en détruisant par chauffage les cellules malades, plus sensibles que les saines [2]. Mais le domaine qui a progressé de façon fulgurante reste l'informatique. Les avancées spectaculaires et rapides dans le domaine de la micro-électronique montrent les progrès effectués dans la miniaturisation des composants électroniques et dans leur vitesse de travail. Par exemple, en 1995, sur un micro-processeur, on retrouvait environ 4 millions de transistors par centimètre carré pour une fréquence de 150 MHz ; en 2007, on retrouve 50 millions de transistors par centimètre carré pour une fréquence de 2 GHz [2].

Malheureusement, les lois de la physique imposent des limites sur la croissance des micro-composants électroniques. Les limites sont principalement dues aux technologies employées pour la fabrication de ces composants. Le procédé optique de gravure sur wafer de silicium de la structure est soumis au critère de Rayleigh-Abbe qui fixe la plus petite

dimension d réalisable avec un rayonnement de longueur d'onde λ et un matériel optique d'ouverture numérique ON :

$$d = \frac{0,61\lambda}{ON} \quad (1)$$

Pour pouvoir descendre en-deçà de cette résolution, une voie s'ouvre à nous, celle des nanosciences et des nanotechnologies, c'est-à-dire l'étude et la réalisation d'objets dont les dimensions sont inférieures à la centaine de nanomètres. En 1959, dans un congrès de l'*American Physical Society*, le physicien Richard Feynman, qui obtiendra le prix Nobel de physique en 1965, présente la célèbre conférence intitulée « There is plenty of room at the bottom » que l'on peut traduire par « il y a beaucoup de place en bas ». À travers cette conférence, il entendait montrer toute l'étendue des applications possibles si l'on pouvait manipuler la matière à l'échelle nanométrique. Bien entendu, la technologie de cette époque ne permettait pas la réalisation d'objets de dimension de l'ordre ou inférieure à la centaine de nanomètres. De nos jours, cette technologie existe. En effet, l'apparition de nouvelles techniques de gravure, par faisceau électronique ou faisceau ionique, permet de réaliser des objets de taille nanométrique. De plus, les techniques d'analyse et d'observation ont, également, progressé grâce à l'apparition de nouveaux microscopes dont les résolutions sont inférieures au nanomètre : le microscope à effet tunnel ou Scanning Tunnel Microscope (STM) inventé par Binnig et Rohrer ou le microscope électronique en transmission de Ruska et Knoll. Binnig, Rohrer et Ruska ont été récompensés par le prix Nobel de physique en 1986 pour leurs inventions. De plus, en 1990, Eigler et Schweizer réussissent à déplacer des atomes de xénon sur un film de nickel à l'aide d'un STM pour écrire le sigle d'une célèbre firme de micro-ordinateur [3]. L'intuition de Feynman se concrétise de plus en plus. La compréhension des phénomènes physiques à cette échelle est en plein essor, en particulier dans le domaine de l'optique. En effet, l'interaction entre la lumière et la matière semble réserver des phénomènes des plus intéressants aussi bien sur le plan de la physique fondamentale que sur le plan des riches applications qui peuvent en découler. Pourtant, malgré les progrès technologiques de fabrication, ce n'est que très récemment que l'optique s'intéresse aux dimensions sub-longueur d'onde.

Hans Bethe, prix Nobel de physique en 1967, propose en 1944 une théorie sur la diffraction d'une onde électromagnétique par une ouverture **unique** de dimension sub-longueur d'onde [4]. Le résultat montre une faible transmission de la lumière à travers cette ouverture. Peu de scientifiques se sont intéressés à ce thème. Était-ce dû à des problèmes technologiques ou au fait qu'il semblait impossible que la lumière puisse passer dans des nano-ouvertures ? Il fallut attendre 1998 pour voir la question ressurgir. La

découverte de la « transmission extraordinaire » de la lumière à travers une matrice de trous sub-longueurs d'onde dans un film d'argent, appelée « tamis à photons », a ouvert la voie à un nouveau domaine d'investigation en optique [5]. La transmission mesurée à travers ces ouvertures atteint une dizaine de pourcents pour certaines longueurs d'onde alors que Bethe prévoyait mille fois moins. L'interprétation de ce phénomène est attribué à un couplage entre les ondes plasmons des couches supérieures et inférieures du film nanostructuré par la matrice de trous cylindriques. Ce phénomène s'inscrit pleinement dans la branche de la physique qu'est la plasmonique. Depuis, cette découverte a ouvert la voie à un large domaine d'applications aussi variées que la fabrication de nano-composants opto-électronique [6, 7], la nano-photolithographie [8, 9], l'étude de fluorescence [10, 11] ou les capteurs chimiques [12].

Les niveaux de transmission lumineuse par couplage plasmon à travers des couches métalliques percées d'ouvertures sub-longueurs d'onde restent, cependant, assez faibles. Pour augmenter cette transmission, nous avons proposé une nouvelle structure appelée matrice d'ouverture annulaire ou AAA pour *Annular Aperture Arrays* [13]. L'ouverture consiste en une cavité cylindrique de base annulaire creusée dans la couche de métal. D'un niveau de transmission de 10% dans le cadre plasmonique, nous obtenons un niveau de 90% grâce à cette nouvelle géométrie [14]. L'explication de cette forte transmittance repose sur l'excitation de modes guidés par la cavité annulaire. Cette thèse s'inscrit dans le cadre de compréhension de ce type de phénomènes aussi bien théoriquement qu'expérimentalement.

Dans le premier chapitre, nous présenterons un état de l'art sur les transmissions de la lumière par des ouvertures sub-longueurs d'onde. La littérature est très abondante sur ce sujet mais nous avons essayé d'être le plus exhaustif possible sur les avancées théoriques aussi bien que sur les expériences menées pour comprendre le comportement lumineux à ces échelles de longueur. La première approche concerne les recherches dans le domaine de la plasmonique à travers un descriptif succinct des ondes plasmons, puis présente de nombreux travaux réalisés. La deuxième approche est centrée sur l'étude des modes de cavité pour un guide de forme annulaire. Les différents modes sont exposés concrètement ainsi que les premiers résultats théoriques et expérimentaux prometteurs obtenus.

Nous développons, dans un deuxième chapitre, le code utilisé pour obtenir les courbes de transmissions théoriques de la lumière en fonction de la longueur d'onde. Ce code est basé sur la résolution des équations de Maxwell par la méthode des différences finies dans le domaine temporel avec l'algorithme de Yee. Pour éviter de fausser les calculs avec des ondes réfléchies par les bords de la fenêtre de calcul, la méthode des couches absorbantes

développée par Bérenger est intégrée au code. Le comportement dispersif des métaux est pris en compte à travers un modèle de Drude pour l'argent et l'aluminium et à travers un modèle de Drude-Lorentz pour l'or. Enfin, une étude de l'influence des paramètres géométriques des nanostructures sur la transmission lumineuse est proposée afin d'avoir la meilleure compréhension possible de ce phénomène. Cette étude porte également sur l'influence de la polarisation du faisceau incident illuminant le film métallique.

Le troisième chapitre se base sur les résultats de la partie précédente et donne les résultats expérimentaux obtenus sur des couches métalliques avec des ouvertures annulaires. Après avoir explicité les processus de fabrication de nos structures et une première validation quantitative des propriétés de filtrage de nos matrices, une caractérisation optique en champ proche est proposée pour cartographier le champ électromagnétique au voisinage immédiat du film métallique. La caractérisation s'est faite en mode réflexion et en mode transmission. Pour finir cette partie, nous montrerons les spectres obtenus démontrant expérimentalement une transmission proche de 90%.

Enfin, nous proposerons plusieurs perspectives, aussi bien tournées vers la recherche fondamentale que vers les applications possibles de ces structures. La partie principale de ce chapitre concernera l'étude d'une double couche de métal nanostructurée par des ouvertures annulaires. L'impact de la structuration sur la position des pics de transmission n'est pas négligeable et est expliqué. Combiné avec un matériau électro-optique, de nombreuses applications peuvent en découler, en particulier dans le filtrage de la lumière. L'utilisation de l'exaltation du champ dans les ouvertures annulaires peut permettre la génération d'un second harmonique en optique non-linéaire sans accord de phase ou l'étude en fluorescence de molécules. Enfin, la mise en évidence du mode de cavité TEM laisse envisager des applications importantes sur le filtrage de la lumière.

Chapitre 1

État de l'art sur les transmissions extraordinaires optiques

1.1 Introduction

En 1944, Bethe propose un modèle de diffraction du champ électromagnétique pour un trou circulaire **unique** de dimension inférieure à la longueur d'onde dans un film métallique infini [4]. Dans ce travail, il calcule le coefficient de transmission de la lumière à travers ce trou et démontre que ce coefficient est proportionnel à $(kD)^4$, k étant le module du vecteur d'onde et D le diamètre de l'ouverture. Le résultat trouvé ne laisse aucune place à de fortes transmissions. Malgré l'erreur corrigée plus tard par Bouwkamp [15] sur le calcul du champ électrique dans la zone proche de l'ouverture, le résultat est peu modifié. La transmittance est par exemple de 10^{-3} pour une longueur d'onde de 1370 nm et un diamètre de 300 nm [5]. Ce résultat reste purement théorique. Insistons sur le fait que le résultat est obtenu à partir d'un trou unique. L'effet de couplage entre les trous d'une matrice n'est pas étudié.

La technologie de l'époque ne permettait pas la fabrication de telles ouvertures sub-longueurs d'onde. Il semblerait, de plus, que pour de nombreux physiciens, la transmission de la lumière à travers des ouvertures nanométriques était un problème entendu du fait du peu de transmission possible. Aussi, peu de travaux concernant ce sujet ont été réalisés. On peut citer cependant les travaux de Ulrich, en 1967, dans le domaine des infra-rouges avec des structures périodiques aux dimensions millimétriques : il analyse l'interaction de la

lumière avec la structure en terme de capacité ou d'inductance [16]. De même, et toujours pour les mêmes longueurs d'onde, Compton *et al.* étudient la diffraction lumineuse due à des structures cylindriques dont la base est une croix [17]. Notons qu'un travail a été fait pour augmenter le rendement de l'énergie solaire infra-rouge captée par un film de semi-conducteur à base d'étain Sn dopé par un oxyde d'indium In_2O_3 en structurant celui-ci avec une grille micrométrique [18]. Déjà la structuration d'un film métallique offrait des possibilités et des propriétés physiques nouvelles.

Depuis les années 1980, des techniques de gravure existent pour réaliser des composants dont les dimensions sont proches de la centaine de nanomètres. En 1998, Ebbesen *et al.* observent une transmission sélective de la lumière à travers une matrice de trous cylindriques, creusés par gravure ionique, dans une couche opaque de 200 nm d'épaisseur d'argent [5]. Les trous ont un diamètre de 150 nm pour une période de 900 nm. Cet arrangement périodique est crucial pour l'explication de ce phénomène. Les auteurs mesurent, ainsi, une transmittance expérimentale de l'ordre de 6% pour certaines longueurs d'onde dans le visible. Cette transmission est qualifiée d'extraordinaire car elle est plus de mille fois supérieure à celle proposée par la théorie de Bethe-Bouwkamp. La lumière peut donc passer par des ouvertures de tailles plus petites que sa propre longueur d'onde !

Plusieurs études théoriques portant sur ce phénomène ont été publiées. Une première hypothèse est apportée par Treacy [19]. Il montre que la transmission de la lumière à travers une fine couche de métal nanostructurée par un réseau de fentes de largeur de 200 nm varie fortement d'une longueur d'onde à l'autre du fait de la structuration de la couche. Mais l'explication admise maintenant par la communauté scientifique repose sur le couplage entre les plasmons de surface de chaque interface métallique. Nous la développons au cours de ce chapitre, ainsi que les nombreuses études théoriques et expérimentales qui en ont découlé. Il existe, cependant, une autre solution pour obtenir une transmission optique extraordinaire. En effet, les modes de cavité sont une explication possible de la transmission exaltée et permettent d'obtenir des niveaux de transmission beaucoup plus importants. Nous explicitons le calcul des modes dans une cavité métallique de forme annulaire dans une seconde partie. Enfin, nous finissons en exposant les premiers travaux concernant la mise en évidence de la forte transmission de la lumière grâce aux structures annulaires.

1.2 Transmission extraordinaire assistée par plasmons

En 1902, Wood observe l'apparition de franges sombres dans le spectre de diffraction par un réseau métallique d'une source continue de lumière blanche [20]. L'explication fut apportée par Fano en 1941 : ces anomalies dans le spectre sont associées aux plasmons de surface créés par le biais d'un réseau de diffraction [21]. Ces plasmons peuvent également être excités à l'aide d'une réflexion totale frustrée [22, 23] comme indiqué sur la figure 1.1. L'angle d'incidence θ doit être supérieur à l'angle limite de l'interface verre-air pour les configurations d'Otto et de Kretschmann. L'épaisseur de la couche d'air et celle du métal sont très faibles.

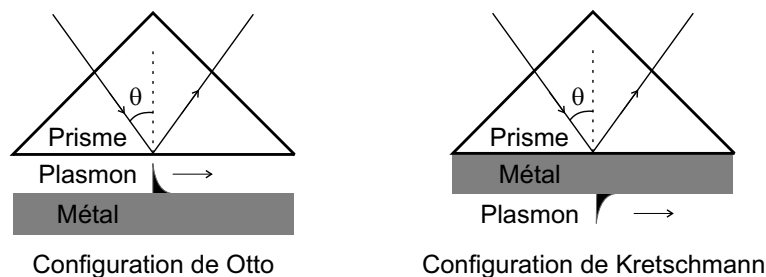


Figure 1.1 – Deux configurations pour l'excitation de plasmons de surface : celle de Otto et celle de Kretschmann.

Le lecteur pourra trouver une étude expérimentale très complète sur les plasmons dans la référence [24]. Leurs applications sont nombreuses dans des domaines très variés comme, par exemple, la caractérisation de films métalliques, de molécules ou de gaz [25, 26], la microscopie champ proche optique [27, 28, 29], les micro-composants opto-électroniques [30, 31] ou la lithographie [32]. Dans cette partie, après un bref rappel sur la théorie des plasmons, nous explicitons leur rôle dans le cadre des transmissions extraordinaires.

1.2.1 Un peu de théorie sur les plasmons

Le plasmon de surface est une onde de densité d'électrons située à l'interface entre un milieu conducteur, comme un métal, et un milieu diélectrique, comme l'air ou le verre [33]. Cette onde provient du couplage entre les photons incidents arrivant sur l'interface métallique et les électrons libres proches de l'interface. Ce couplage conduit à une oscillation longitudinale des électrons et à une onde électromagnétique polarisée TM, c'est-à-dire que le champ excitation magnétique \vec{H} est perpendiculaire au plan d'incidence (xz) de

la figure 1.2. En effet, seule cette polarisation permet d'obtenir une résonance du mode plasmon.

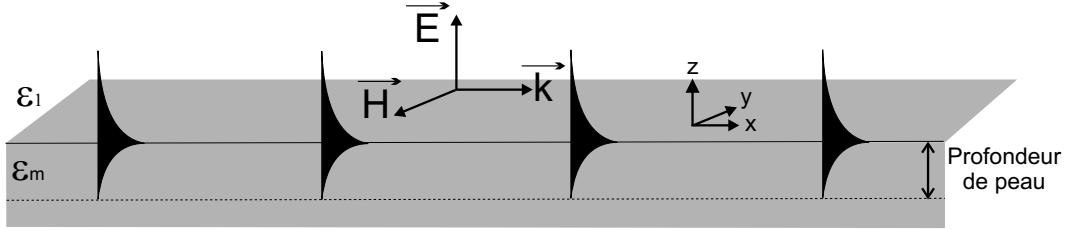


Figure 1.2 – Propagation de plasmons sur l'interface d'un métal de permittivité ε_m et d'un diélectrique de permittivité ε_1 .

L'expression du champ électromagnétique associé au plasmon est obtenue en résolvant les équations de Maxwell. L'amplitude complexe du champ \vec{H} est de la forme :

$$H(x, z, t) = H_0 e^{ik_{ps}x} e^{ik_z z} e^{-i\omega t} \quad (1.1)$$

dans laquelle ω est la pulsation de l'onde et k_{ps} le vecteur d'onde associé à la direction de propagation de l'onde plasmon qui s'écrit :

$$k_{ps} = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_m(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon_m(\omega)}} \quad (1.2)$$

où ε_1 représente la permittivité absolue du diélectrique (substrat ou air), $\varepsilon_m(\omega)$ la permittivité du métal en fonction de la pulsation et k_0 est le vecteur d'onde dans le vide. La permittivité du métal est complexe $\varepsilon_m(\omega) = \varepsilon'_m(\omega) + i\varepsilon''_m(\omega)$. Par conséquent, cela entraîne un vecteur d'onde du plasmon de surface de forme complexe $k_{ps} = k'_{ps} + ik''_{ps}$. Pour un métal noble, comme l'argent ou l'or, la partie réelle ε'_m de la permittivité absolue est négative avec une valeur absolue supérieure à 1 pour les fréquences optiques $|\varepsilon'_m| > 1$. De plus, la valeur absolue de la partie réelle est plus grande que la valeur absolue de la partie imaginaire $|\varepsilon''_m| \ll |\varepsilon'_m|$.

Avec ces données, la partie réelle de ce vecteur représentant la partie propagative du plasmon s'écrit :

$$k'_{ps} = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon'_m(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon'_m(\omega)}} \quad (1.3)$$

La partie imaginaire, représentant les pertes associées à cette propagation, dues généralement à l'état de surface du métal et à son absorption, prend la forme suivante :

$$k''_{ps} = k_0 \left(\frac{\varepsilon_1 \varepsilon'_m(\omega)}{\varepsilon_1 + \varepsilon'_m(\omega)} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{\varepsilon''_m(\omega)}{2(\varepsilon'_m(\omega))^2} \quad (1.4)$$

Par conséquent, la composante propagative du vecteur d'onde plasmon k'_{ps} est plus grande que le vecteur d'onde k_0 dans le vide :

$$k'_{ps} > k_0 \quad (1.5)$$

Cela a deux conséquences importantes. La première concerne la composante k_z de vecteur d'onde : elle est imaginaire, aussi bien dans le métal que dans le substrat, puisque proportionnelle à $k_0^2 - k_{ps}^{\prime 2}$, la partie imaginaire $k_{ps}^{\prime 2}$ étant négligée en première approximation car plus petite que la partie réelle. L'amplitude de l'onde plasmon décroît donc de façon exponentielle depuis l'interface suivant l'axe z du repère de la figure 1.2. En second point, l'équation 1.5 implique que le plasmon ne peut pas être excité à partir d'une onde progressive. Deux configurations ont déjà été présentées pour arriver au mode plasmon, celles d'Otto et de Kretschmann, présentées sur la figure 1.1. Une autre possibilité réside dans l'utilisation de structures diffractantes, en particulier les réseaux. La formule des réseaux donne les vecteurs d'onde des ondes diffractées par ceux-ci :

$$k^m = k_i \sin \theta + m \frac{2\pi}{a} \quad (1.6)$$

où k_i est le module du vecteur d'onde incident, θ l'angle d'incidence du faisceau arrivant sur le réseau, a le pas du réseau et m est un entier indiquant l'ordre de diffraction. On peut exciter une résonance de plasmon lorsque la composante transverse du vecteur d'onde de l'onde diffractée est proche de celle du vecteur d'onde plasmon : $k^m \sim k'_{ps}$. Le couplage des résonances plasmons sur les interfaces explique la transmission exaltée de la lumière à travers des couches métalliques nano-structurées. À noter qu'il n'est pas nécessaire

d'avoir des ouvertures dans la couche métallique pour obtenir une transmission. Seule la structuration en réseau est nécessaire pour une couche métallique fine [34, 35]. Cependant, les réseaux les plus utilisés restent ceux basés sur des ouvertures dans la couche métallique.

1.2.2 Transmission de la lumière à travers des nano-ouvertures

L'interprétation avancée pour expliquer la transmission de la lumière à travers la matrice de trous de 150 nm de diamètre dans l'expérience d'Ebbesen *et al.* repose sur un couplage entre plasmons des faces supérieure et inférieure de la couche d'argent. Deux constats ont permis de valider cette interprétation [5]. Le premier réside sur le fait que les ondes plasmons apparaissent uniquement dans une couche métallique. Une expérience similaire menée avec une couche de germanium nanostructurée avec les mêmes paramètres n'a pas mis en évidence cette transmission. De plus, la transmission lumineuse est fortement dépendante de l'angle d'incidence du faisceau d'illumination de la couche métallique. Ce comportement est celui observé lors du couplage de la lumière avec des plasmons par l'intermédiaire d'un réseau [36]. Cette proposition a été confirmée par Schröter et Heitmann [37], puis par Porto, Garcia-Vidal et Pendry [38]. Dans les deux cas et par des méthodes différentes, l'analyse repose sur le calcul de la transmission à travers des fentes infinies, comme sur la figure 1.3, pour lesquelles cette transmission existe également. De plus, l'utilisation de fentes rend les simulations beaucoup plus simples à calculer.

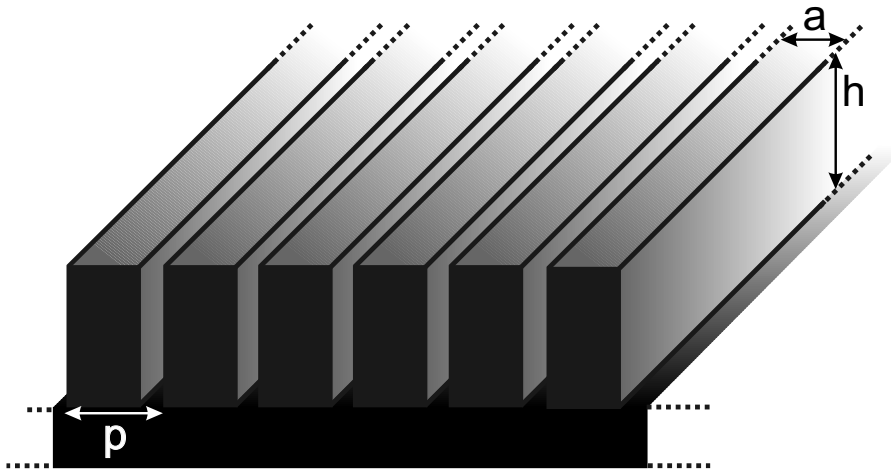


Figure 1.3 – Schéma d'un réseau lamellaire infini dans lequel p représente la période du réseau, a l'épaisseur de la fente et h la hauteur de la fente.

Les résultats obtenus mettent en évidence l'excitation des modes plasmons de chaque

interface métallique et valident, par conséquent, l'explication de cette transmission exaltée. Une démonstration expérimentale de l'excitation des ondes plasmons aux interfaces de la couche métallique fut apportée par Grupp *et al.* [39]. Depuis, de nombreux travaux théoriques ont été réalisés concernant ces nanostructures aussi bien pour des fentes [40, 41] que pour des trous [42, 43, 44] pour connaître l'impact des paramètres géométriques sur la transmission. Il en ressort que les modes plasmons dépendent essentiellement de la période des réseaux d'ouvertures étudiés. Expérimentalement, Degiron *et al.* ont montré l'influence de la profondeur de trous circulaires tout en gardant la période et le diamètre constants [45]. Ils ont, ainsi, mis en évidence les épaisseurs nécessaires des ouvertures pour obtenir un couplage optimal entre les plasmons de surface. Pour des épaisseurs de couches métalliques supérieures à 570 nm, le couplage n'est pas efficace. De leur côté, Klein-Koerkamp *et al.* ont étudié l'influence de la forme circulaire ou rectangulaire de l'ouverture [46]. Ils démontrent que la géométrie rectangulaire permet d'avoir une meilleure transmittance avec un décalage de la position en longueur d'onde des pics vers le rouge. L'explication repose sur de meilleures résonances dues à la forme rectangulaire de l'ouverture. Adapter la forme de l'ouverture permet de fabriquer des composants électro-luminescents [47] ou des filtres [48, 49, 50].

Une autre découverte importante est la possibilité d'avoir une bonne transmittance mais également une bonne directivité du faisceau transmis au passage d'une simple ouverture (fente ou trou) de dimension sub-longueur d'onde creusée dans une couche métallique. Il suffit pour cela de créer un réseau autour de cette ouverture [51, 52, 53].

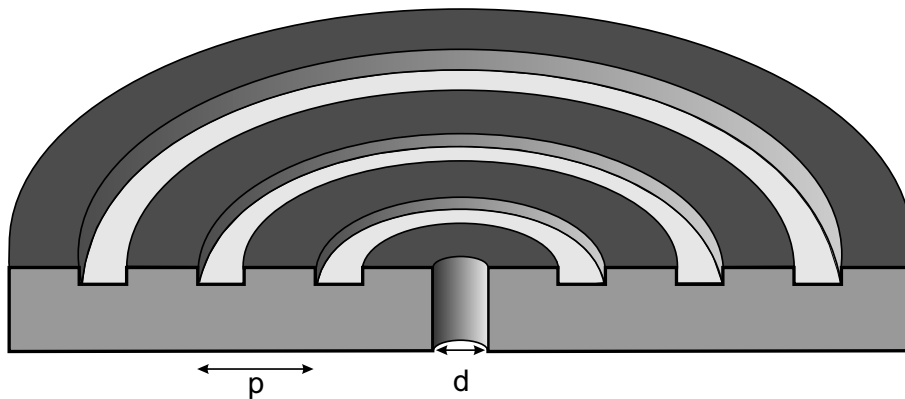


Figure 1.4 – Perspective d'une coupe transverse d'un trou circulaire de diamètre d entouré par un réseau circulaire de période p .

L'interaction entre la lumière transmise par l'ouverture et le plasmon créé par le réseau de surface permet de compenser les effets de diffraction et de garder un faisceau

directionnel. De telles structures placées au bout d'une fibre optique filtrent la lumière tout en gardant la directivité du faisceau. Une application possible est d'utiliser ce type de structure comme sonde pour la microscopie champ proche [54].

De nombreux travaux restent à faire pour comprendre complètement le processus de la résonance plasmon pour ce type de structure comme le souligne les références [55, 56] en particulier tout ce qui concerne l'influence de la localisation du mode. Malgré cela, cette découverte a ouvert la voie à un vaste domaine de recherches et d'applications. Nous donnons ici quelques exemples de ces travaux de recherche. Récemment, une transmission extraordinaire a été mise en évidence dans le domaine des ultra-violets grâce à des ouvertures circulaires de largeur 150 nm, pour une période de 280 nm dans une couche d'aluminium d'épaisseur 90 nm [57]. Une transmittance de 38% pour une longueur d'onde de 350 nm est obtenue. Un résultat similaire avait déjà été obtenu dans le domaine des infra-rouges pour des ouvertures de dimensions beaucoup plus grandes de l'ordre du micromètre [58]. La transmittance lumineuse a pu, également, être augmentée en implantant de façon appropriée un miroir de Bragg, constitué de lignes de 150 nm d'épaisseur espacées par une période de 400 nm, sur les bords d'une matrice de trous de 150 nm de diamètre pour une période de 800 nm creusée dans un film d'or de 100 nm d'épaisseur [59]. La réflexion de l'onde sur ce miroir vient se combiner en phase avec la lumière transmise et ainsi amplifie l'intensité lumineuse transmise. L'évolution des connaissances sur les plasmons a permis la progression des capteurs pour la caractérisation des molécules avec un encombrement beaucoup plus réduit que les méthodes de Otto et Kretschmann déjà citées [60, 61] ou avec une amplification du pic Raman, signature de ces molécules [62]. Ces matrices avec des dimensions de diamètre et de période adaptés peuvent devenir d'excellents filtres pour la lumière [63, 64, 65]. D'ailleurs, une application possible souvent citée est l'adaptation de ces matrices pour l'obtention d'écrans plats. Enfin, des travaux visant à contrôler la position en longueur d'onde et l'intensité des pics de transmission à l'aide de matériaux électro-commandables comme les cristaux liquides [66, 67] ou des semi-conducteurs [68] sont en cours d'étude.

Afin d'augmenter la transmittance de ces nano-ouvertures, une autre voie proposée est celle de l'étude des modes de cavité. Déjà, Porto *et al.* avaient montré que la transmission exaltée pouvait s'expliquer par l'excitation des modes guidés entre les fentes [38]. Popov *et al.* ont, eux, proposé une explication de la transmission extraordinaire basée sur l'existence de modes de cavité TE ou TM dans les ouvertures cylindriques (le mode TEM ne pouvant pas exister dans ce type de géométrie pour des raisons de symétrie) [69, 70].

Nous proposons, dans la suite de ce mémoire, l'étude des modes dans des cavités de forme bien particulière : la forme annulaire.

1.3 Théorie sur les modes guidés dans une cavité annulaire

Dans cette partie, nous calculons les composantes du champ électromagnétique (\vec{E}, \vec{H}) dans le cadre d'un guide annulaire à section circulaire comme l'indique la figure 1.5. Les parois du guide sont en métal parfait. Un repère en coordonnées cartésiennes et un repère en coordonnées cylindriques sont également représentés sur la figure.

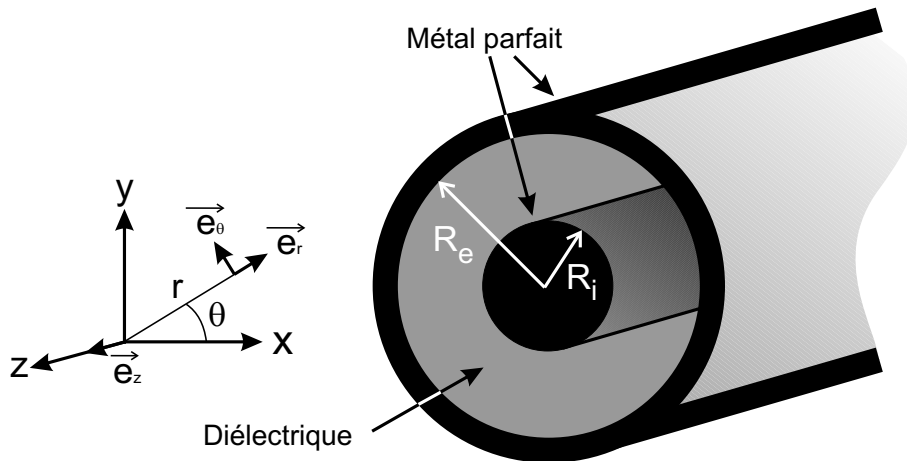


Figure 1.5 – Schéma de la cavité étudiée. Les parois en métal parfait sont séparées par une couche de diélectrique. Un repère en coordonnées cartésiennes et un repère en coordonnées cylindriques orientent l'espace.

1.3.1 Hypothèses de travail

Les équations de Maxwell, avec leur sens physique, s'écrivent :

- équation de Maxwell-Gauss :

$$\operatorname{div}(\vec{D}) = \rho_{\text{libre}} \quad (1.7)$$

elle traduit l'existence des monopoles électriques ;

- équation de conservation de flux magnétique :

$$\text{div}(\vec{B}) = 0 \quad (1.8)$$

elle exprime la non-existence de monopole magnétique ;

- équation de Maxwell-Faraday :

$$\text{rot}(\vec{E}) = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (1.9)$$

- équation de Maxwell-Ampère :

$$\text{rot}(\vec{H}) = \vec{j}_{\text{libre}} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (1.10)$$

Ces deux dernières équations montrent le lien étroit entre les phénomènes électriques et magnétiques. Elles permettent, de plus, de connaître l'évolution énergétique du champ électromagnétique.

Les champs \vec{E} , \vec{B} , \vec{D} et \vec{H} sont respectivement les champs électrique, magnétique, excitation électrique et excitation magnétique. Les champs \vec{E} et \vec{H} forment le champ électromagnétique. Les différents champs sont dépendants du temps t et possèdent trois composantes spatiales suivant x , y et z . Ces champs sont reliés par les équations constitutives suivantes :

$$\vec{D} = \varepsilon \vec{E} \quad (1.11)$$

et

$$\vec{H} = \frac{\vec{B}}{\mu} \quad (1.12)$$

Les termes ε et μ sont respectivement la permittivité absolue et la perméabilité absolue du milieu. Ils représentent la réponse du milieu à une excitation électromagnétique extérieure. ρ_{libre} représente la densité de charges libres et \vec{j}_{libre} la densité de courant libre. Dans notre cas, les couches métalliques sont neutres car le métal est supposé parfait. Il n'y a donc aucune densité libre, aussi bien de charge que de courant, dans la détermination des modes de cavité. L'onde considérée est une onde plane monochromatique, de pulsation ω se déplaçant suivant la direction z , direction selon laquelle l'ouverture annulaire est supposée infinie (voir figure 1.5). Pour une telle onde, le champ s'écrit :

$$\vec{E}(r, \theta, z, t) = \vec{E}(r, \theta) \exp(-i\omega t + i\beta z) \quad (1.13)$$

$$\vec{H}(r, \theta, z, t) = \vec{H}(r, \theta) \exp(-i\omega t + i\beta z) \quad (1.14)$$

où β est la composante du vecteur d'onde le long de la direction de propagation.

Avec ces hypothèses, les équations de Maxwell prennent, en introduisant l'opérateur nabla $\vec{\nabla}$, la forme suivante :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0 \quad (1.15)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{H} = 0 \quad (1.16)$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = i\mu\omega \vec{H} \quad (1.17)$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{H} = -i\varepsilon\omega \vec{E} \quad (1.18)$$

La résolution de ce système nous donnera la forme explicite du champ électromagnétique dans la cavité.

1.3.2 Calcul des modes

La direction z , de vecteur unitaire \vec{e}_z , joue un rôle particulier puisqu'elle représente la direction de propagation du champ. Il est, par conséquent, plus simple de décomposer les champs et l'opérateur nabla en deux composantes : une composante longitudinale suivant la direction z et une composante transverse suivant un plan perpendiculaire à la direction z . Cette composante est notée avec un indice T dans la suite des calculs.

Ainsi, les champs donnés par les équations 1.13 et 1.14 se décomposent de la façon suivante :

$$\vec{E}(r, \theta) = \vec{E}_T(r, \theta) + E_z(r, \theta)\vec{e}_z \quad (1.19)$$

$$\vec{H}(r, \theta) = \vec{H}_T(r, \theta) + H_z(r, \theta)\vec{e}_z \quad (1.20)$$

De manière identique, la décomposition de l'opérateur nabla s'écrit :

$$\vec{\nabla} = \vec{\nabla}_T + \vec{e}_z \frac{\partial}{\partial z} = \vec{\nabla}_T + i\beta \vec{e}_z \quad (1.21)$$

De plus, en tenant compte des coordonnées cylindriques, la composante transverse de l'opérateur nabla prend la forme suivante :

$$\vec{\nabla}_T = \vec{e}_r \frac{\partial}{\partial r} + \vec{e}_\theta \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} \quad (1.22)$$

L'idée est de montrer que l'on peut déterminer simplement les composantes transverses une fois connue la composante longitudinale. Pour cela, nous développons les équations de Maxwell en utilisant la décomposition proposée.

Les équations 1.15 et 1.16 donnent :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \vec{\nabla}_T \cdot \vec{E}_T + i\beta E_z = 0 \quad (1.23)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{H} = \vec{\nabla}_T \cdot \vec{H}_T + i\beta H_z = 0 \quad (1.24)$$

Les équations 1.17 et 1.18 sont à peine plus longues à développer. Nous donnons les principales étapes pour l'équation de Maxwell-Faraday.

$$\begin{aligned} \vec{\nabla} \wedge \vec{E} &= i\mu\omega \vec{H}_T + [i\mu\omega H_z \vec{e}_z] \\ &= (\vec{\nabla}_T + i\beta \vec{e}_z) \wedge (\vec{E}_T + E_z \vec{e}_z) \\ &= [\vec{\nabla}_T \wedge \vec{E}_T] + \vec{e}_z \wedge \vec{\nabla}_T E_z + i\beta \vec{e}_z \wedge \vec{E}_T \end{aligned} \quad (1.25)$$

Les parties entre crochets dans les équations représentent les composantes longitudinales. En égalant les composantes longitudinales entre elles, ainsi que les composantes transverses, nous obtenons le système suivant :

$$\vec{\nabla}_T \wedge \vec{E}_T - i\mu\omega H_z \vec{e}_z = 0 \quad (1.26)$$

$$\vec{\nabla}_T E_z \wedge \vec{e}_z + i\beta \vec{e}_z \wedge \vec{E}_T - i\mu\omega \vec{H}_T = 0 \quad (1.27)$$

Par analogie, l'équation de Maxwell-Faraday donne le système suivant :

$$\vec{\nabla}_T \wedge \vec{H}_T + i\varepsilon\omega E_z \vec{e}_z = 0 \quad (1.28)$$

$$\vec{\nabla}_T H_z \wedge \vec{e}_z + i\beta \vec{e}_z \wedge \vec{H}_T - i\varepsilon\omega \vec{E}_T = 0 \quad (1.29)$$

Le système constitué des équations 1.23, 1.24 et 1.26 à 1.29 permet d'exprimer les composantes transverses en fonction des composantes longitudinales. En remarquant que $\vec{e}_z \wedge (\vec{e}_z \wedge \vec{E}_T) = -\vec{E}_T$ et que $\vec{e}_z \wedge (\vec{\nabla}_T E_z \wedge \vec{e}_z) = \vec{\nabla}_T E_z$, les relations sont identiques avec les composantes du vecteur \vec{H} en remplaçant E par H , on résout le système :

$$\vec{E}_T = -\frac{i\beta}{k_c^2} \left(\vec{\nabla}_T E_z - \frac{\omega\mu}{\beta} \vec{e}_z \wedge \vec{\nabla}_T H_z \right) \quad (1.30)$$

$$\vec{H}_T = -\frac{i\beta}{k_c^2} \left(\vec{\nabla}_T H_z - \frac{\omega\varepsilon}{\beta} \vec{e}_z \wedge \vec{\nabla}_T E_z \right) \quad (1.31)$$

dans lesquelles k_c représente le vecteur d'onde de coupure défini par :

$$k_c^2 = \omega^2 \varepsilon \mu - \beta^2 \quad (1.32)$$

Ces expressions donnent les composantes transverses pour des modes possédant un vecteur d'onde de coupure. Il est évident que les équations 1.30 et 1.31 n'ont de sens que si le vecteur d'onde de coupure est différent de zéro. À partir de k_c , on peut définir une fréquence de coupure :

$$f_c = \frac{ck_c}{2\pi} \quad (1.33)$$

dans laquelle c représente la vitesse de la lumière dans le vide, et également une longueur d'onde de coupure :

$$\lambda_c = \frac{2\pi}{k_c} \quad (1.34)$$

Ces modes ont la particularité d'être dans l'incapacité de se propager au-delà de la longueur d'onde de coupure ou, de manière équivalente, en deçà de la fréquence de coupure. Au-delà de cette valeur de coupure, le vecteur d'onde associé à la propagation du mode guidé dans la cavité devient imaginaire pur. Le mode s'atténue alors dans la cavité.

En coordonnées cylindriques, les composantes des champs sont :

– pour le champ électrique :

$$E_r = -\frac{i\beta}{k_c^2} \left(\frac{\partial E_z}{\partial r} - \frac{\omega\mu}{\beta} \frac{1}{r} \frac{\partial H_z}{\partial \theta} \right) \quad (1.35)$$

$$E_\theta = -\frac{i\beta}{k_c^2} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial E_z}{\partial \theta} + \frac{\omega\mu}{\beta} \frac{\partial H_z}{\partial r} \right) \quad (1.36)$$

– pour le champ excitation magnétique :

$$H_r = -\frac{i\beta}{k_c^2} \left(\frac{\partial H_z}{\partial r} + \frac{\omega\varepsilon}{\beta} \frac{1}{r} \frac{\partial E_z}{\partial \theta} \right) \quad (1.37)$$

$$H_\theta = -\frac{i\beta}{k_c^2} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial H_z}{\partial \theta} - \frac{\omega\varepsilon}{\beta} \frac{\partial E_z}{\partial r} \right) \quad (1.38)$$

Il reste, maintenant, à déterminer les composantes longitudinales E_z et H_z . Celles-ci satisfont naturellement à l'équation d'Helmholtz :

$$\nabla_T^2 E_z + k_c^2 E_z = 0 \quad (1.39)$$

$$\nabla_T^2 H_z + k_c^2 H_z = 0 \quad (1.40)$$

Dans le système de coordonnées cylindriques, celui qui nous intéresse vu la symétrie de notre structure, les équations 1.39, 1.40 prennent la forme suivante :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial E_z}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 E_z}{\partial \theta^2} + k_c^2 E_z = 0 \quad (1.41)$$

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial H_z}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 H_z}{\partial \theta^2} + k_c^2 H_z = 0 \quad (1.42)$$

La résolution des deux équations d'Helmholtz doit tenir compte des conditions aux limites dans le plan transverse provenant de l'interface entre la paroi du conducteur et du diélectrique. Nous explicitons maintenant les composantes pour les différents modes guidés.

1.3.3 Modes de cavité

Les ondes électromagnétiques dans un guide n'ont pas les propriétés d'une onde plane progressive se propageant dans le vide, par exemple, le champ électrique et le champ magnétique ne sont pas toujours perpendiculaires à la direction de propagation. Cette partie a pour but de décrire rapidement les différents modes existant dans un guide [71].

Mode Transverse Électrique et Magnétique (TEM)

Pour le mode TEM, le champ électromagnétique ne possède aucune composante longitudinale : E_z et H_z sont égaux à zéro. Dans ces conditions, on montre que cela impose un vecteur d'onde de coupure également nul : $k_c = 0$. Toutes les longueurs d'onde peuvent être transmises si le mode est excité.

Le champ guidé est perpendiculaire à la direction de propagation : il se propage comme une onde plane dans le vide.

La détermination des composantes se fait en résolvant les équations de Maxwell dans le système des coordonnées cylindriques avec les conditions aux limites suivantes sur les parois du métal parfait, pour R_i et R_e comme indiqué sur la figure 1.5 :

- le champ excitation magnétique est nul : $H_z = 0$,
- et la dérivée par rapport à r de \vec{H} s'annule : $\frac{\partial H_r}{\partial r} = 0$.

On trouve alors comme coordonnées :

- pour le champ électrique :

$$E_z = E_\theta = 0 \quad (1.43)$$

$$E_r = \frac{\omega\mu}{\beta} \frac{H_0}{r} e^{-im\theta} e^{-i\beta z} \quad (1.44)$$

- pour le champ magnétique :

$$H_z = H_r = 0 \quad (1.45)$$

$$H_\theta = \frac{H_0}{r} e^{-im\theta} e^{-i\beta z} \quad (1.46)$$

où H_0 est une constante et m un entier. Le terme $e^{-im\theta}$ représente la somme de deux modes orthogonaux : le premier en $\cos \theta$, le second en $i \sin \theta$.

Mode Transverse Magnétique (TM)

Le champ magnétique dans le cas du mode TM est transverse à la direction de propagation ($H_z = 0$) et les composantes du champ électrique sont toutes différentes de zéro. Pour déterminer la composante E_z du champ, il faut résoudre l'équation 1.41. La solution de cette équation fait appel à la méthode de séparation des variables entre r et θ et implique les fonctions de Bessel de première espèce J_m et deuxième espèce Y_m où m est un entier positif indiquant l'ordre des fonctions de Bessel.

Dans ces conditions, la composante E_z s'écrit :

$$E_z(r, \theta, z) = (AJ_m(k_c r) + BY_m(k_c r)) e^{-im\theta} e^{-i\beta z} \quad (1.47)$$

Les conditions aux limites dans ce cas de figure imposent la valeur de la composante E_z sur les parois du conducteur : $E_z(R_i) = E_z(R_e) = 0$. Compte tenu de l'équation 1.47, ceci revient à résoudre l'équation :

$$J_m(k_c R_i) Y_m(k_c R_e) - J_m(k_c R_e) Y_m(k_c R_i) = 0 \quad (1.48)$$

Les racines de cette équation s'écrivent : $x_{mn} = k_c R_i$ où n est un entier strictement positif ($n > 0$). À chaque racine de l'équation correspond un mode de propagation dans le guide. Chaque mode possède une longueur d'onde de coupure qui, en tenant compte de la définition 1.34, s'écrit :

$$\lambda_c = \frac{2\pi R_i}{x_{mn}} \approx \frac{2(R_e - R_i)}{n} \quad (1.49)$$

Avec les équations 1.35 à 1.38, les coordonnées du champ pour ce mode s'écrivent (le terme $e^{-im\theta} e^{-i\beta z}$ étant omis pour toutes les coordonnées) :

– pour le champ électrique :

$$E_r = -E_0 \frac{i\beta}{k_c} [Y_m(k_c R_i) J'_m(k_c r) - J_m(k_c R_i) Y'_m(k_c r)] \quad (1.50)$$

$$E_\theta = -E_0 \frac{m\beta}{k_c^2 r} [Y_m(k_c R_i) J_m(k_c r) - J_m(k_c R_i) Y_m(k_c r)] \quad (1.51)$$

$$E_z = E_0 [Y_m(k_c R_i) J_m(k_c r) - J_m(k_c R_i) Y_m(k_c r)] \quad (1.52)$$

– pour le champ magnétique :

$$H_r = -E_0 \frac{m\omega\epsilon}{k_c^2 r} [Y_m(k_c R_i) J_m(k_c r) - J_m(k_c R_i) Y_m(k_c r)] \quad (1.53)$$

$$H_\theta = E_0 \frac{i\omega\epsilon}{k_c} [Y_m(k_c R_i) J'_m(k_c r) - J_m(k_c R_i) Y'_m(k_c r)] \quad (1.54)$$

$$H_z = 0 \quad (1.55)$$

où E_0 est une constante.

Mode Transverse Électrique (TE)

L'analogie est très grande entre le mode TE et le mode TM. Dans le mode TE, le champ électrique est transverse à la direction de propagation donc $E_z = 0$. Les composantes du champ magnétique sont toutes non nulles et la composante longitudinale H_z est

déterminée grâce à l'équation 1.42. Comme précédemment, la solution de cette équation implique des fonctions de Bessel et donne :

$$H_z(r, \theta, z) = (AJ_m(k_c r) + BY_m(k_c r)) e^{-im\theta} e^{-i\beta z} \quad (1.56)$$

Les conditions aux limites pour ce mode imposent que la variation de H_z par rapport à r est nulle sur les parois métalliques, donc $\frac{\partial H_z}{\partial r} = 0$ pour $r = R_i$ et $r = R_e$. Il faut résoudre l'équation :

$$J'_m(k_c R_i) Y'_m(k_c R_e) - J'_m(k_c R_e) Y'_m(k_c R_i) = 0 \quad (1.57)$$

Les racines de cette équation sont de la forme : $x'_{mn} = k_c R_i$ et imposent une longueur d'onde de coupure de la forme :

$$\lambda_c = \frac{2\pi R_i}{x'_{mn}} \approx \frac{\pi(R_e + R_i)}{m} \quad (1.58)$$

Il existe un mode guidé pour chaque racine x'_{mn} .

On trouve alors les coordonnées à l'aide des équations 1.35 à 1.38 :

– pour le champ électrique :

$$E_r = H_0 \frac{m\omega\mu}{k_c^2 r} [Y'_m(k_c R_i) J_m(k_c r) - J'_m(k_c R_i) Y_m(k_c r)] \quad (1.59)$$

$$E_\theta = -H_0 \frac{i\omega\mu}{k_c} [Y'_m(k_c R_i) J'_m(k_c r) - J'_m(k_c R_i) Y'_m(k_c r)] \quad (1.60)$$

$$E_z = 0 \quad (1.61)$$

– pour le champ magnétique :

$$H_r = -H_0 \frac{i\beta}{k_c} [Y'_m(k_c R_i) J'_m(k_c r) - J'_m(k_c R_i) Y'_m(k_c r)] \quad (1.62)$$

$$H_\theta = -H_0 \frac{m\beta}{k_c^2 r} [Y'_m(k_c R_i) J_m(k_c r) - J'_m(k_c R_i) Y_m(k_c r)] \quad (1.63)$$

$$H_z = H_0 [Y'_m(k_c R_i) J_m(k_c r) - J'_m(k_c R_i) Y_m(k_c r)] \quad (1.64)$$

où H_0 est une constante.

Nous donnons sur la figure 1.6 quelques exemples pour différents modes guidés dans une ouverture annulaire.

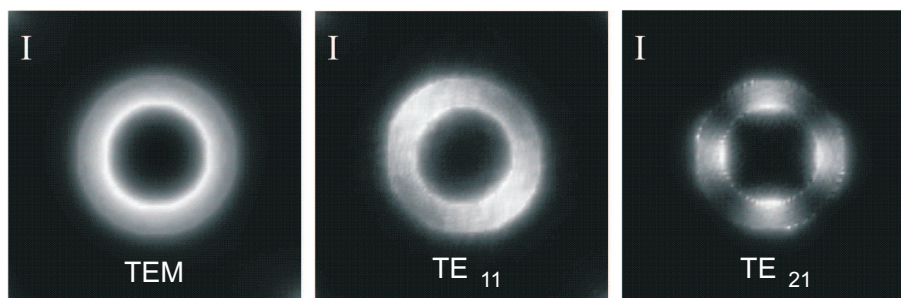


Figure 1.6 – Exemple d'intensités lumineuses I dans une cavité annulaire pour les modes guidés correspondants.

Dans la suite de cette thèse, lorsque nous utiliserons l'appellation de mode, cela se fera en référence aux modes calculés pour une longueur infinie dans la direction de propagation. Il est bien entendu évident que nous parlerons, dans notre cas, du comportement du champ comme voisin de celui du mode guidé calculé pour une cavité de longueur infinie et cela malgré deux points : d'une part, la dimension finie de la cavité impose la présence de coefficients de réflexion sur les faces inférieure et supérieure de la couche de métal. Ces coefficients ne modifient que légèrement la distribution transverse du champ. D'autre part, le métal étant réel, il peut donc présenter une absorption pour certaines longueurs d'onde utilisées. De nouveau, cette absorption ne modifiera que très faiblement la forme de notre mode guidé (par exemple, les modes TE présentent une faible mais non nulle composante axiale du champ électrique). Nous avons donc un *quasi-mode*.

1.4 Travaux sur les structures annulaires

Maintenant que la forme mathématique des modes dans un guide annulaire est connue, nous décrivons les premiers travaux concernant la transmission des champs électromagnétiques à travers des films structurés avec cette géométrie. La figure 1.7 donne un schéma des périodes des structures étudiées.

En 1988, Roberts and McPhedran calculent à partir d'une théorie rigoureuse de la diffraction la transmission de la lumière dans le domaine de longueur d'onde des infra-rouges à travers une couche métallique structurée par des cavités annulaires [72]. Ils obtiennent une transmittance théorique de 100% pour certaines valeurs de longueurs d'onde de l'infra-rouge lointain. Ceci est tout à fait logique car le métal, pris comme parfait dans ce travail, ne présente pas d'absorption des champs. Une réalisation expérimentale de ces prédictions

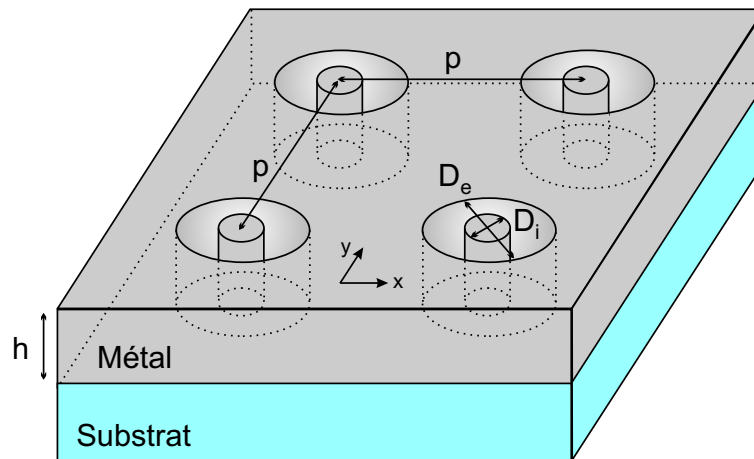


Figure 1.7 – Schéma de 2×2 périodes de cavités annulaires.

est faite l'année suivante, confirmant ainsi la bonne transmittance de cette géométrie [73]. Cette réalisation s'est faite dans une couche d'aluminium de $1,2 \mu\text{m}$ d'épaisseur, avec des cavités de diamètres intérieur et extérieur de longueurs respectives 141 et $149 \mu\text{m}$ et une période de $160 \mu\text{m}$. La transmittance expérimentale obtenue atteint 70% à une fréquence de 450 GHz , soit à une longueur d'onde d'environ $0,7 \text{ mm}$ dans le vide. La transmittance théorique calculée est de l'ordre de 80% pour cette longueur d'onde. C'est la première expérience à notre connaissance concernant la transmission de champs électromagnétiques à travers ce type de cavité. En 1997, Takahara *et al.* ont étudié la propagation de la lumière dans des guides d'ondes métalliques avec différentes géométries de dimensions nanométriques dont un de forme annulaire [74]. Ils démontrent la possibilité de guider la lumière dans ces petites cavités en utilisant le fait qu'un métal possède une permittivité dont la partie réelle est négative et la partie imaginaire très petite devant la partie réelle pour le visible et l'infra-rouge. Ainsi, on peut théoriquement obtenir un vecteur d'onde dont les composantes sont imaginaires sauf une, qui assure la propagation du signal.

En 2002, Baida et Van Labeke proposent une matrice de cavités annulaires dont les dimensions permettent une forte transmission dans le spectre visible de la lumière [13]. Ce travail a été réalisé sans la connaissance des travaux précédents. L'avantage de cette géométrie repose essentiellement sur la forte transmission largement supérieure à celle d'une ouverture cylindrique à base circulaire [14]. Cette forte transmission s'explique par l'excitation de modes de cavité à l'intérieur de la structure [75].

À ce jour, peu d'expériences portant sur la transmission ont été réalisées. Nous avons déjà cité celles de Krug en 1989 dans l'infra-rouge lointain. La difficulté pour obtenir des structures avec un bon facteur de forme et des dimensions nanométriques est sûrement à

l'origine du peu d'expérience sur ces cavités. En 2005, Lockyear *et al.* ont mené une étude théorique et expérimentale sur une ouverture annulaire unique dans le domaine des micro-ondes [76]. Ils démontrent que la transmittance peut être augmentée avec cette géométrie dans cette gamme de longueur d'onde également. Toujours en 2005, Fan *et al.* obtiennent une forte transmission dans l'infra-rouge [77]. Les structures sont réalisées dans une couche d'or de 100 nm d'épaisseur. Pour toutes les matrices fabriquées, le diamètre intérieur est de 194 nm et la période de 1,03 μm . Le diamètre extérieur varie pour chaque matrice et prend les valeurs de 298, 348 et 396 nm. La transmittance obtenue atteint 80% pour une longueur d'onde de 2 μm . Récemment, Orbons *et al.* ont confirmé la forte transmittance possible avec des structures annulaires dans une couche d'argent de 140 nm d'épaisseur. Les caractéristiques géométriques sont respectivement pour le diamètre intérieur, le diamètre extérieur et la période : 330, 580 et 900 nm [78]. La transmittance obtenue atteint 80% pour une longueur d'onde d'environ 1600 nm. Dans les deux expériences citées, il y a un bon accord entre les résultats théoriques et expérimentaux.

Ces expériences ont toutes deux été menées dans le domaine de l'infra-rouge. La seule expérience menée dans le domaine des longueurs d'onde visibles est celle de Salvi *et al.* au département d'optique de l'institut FEMTO-ST de Besançon [79]. La figure 1.8 indique le résultat obtenu et le bon accord, une fois de plus, entre l'expérience et la théorie. Ce résultat a été obtenu grâce à une matrice d'anneaux de diamètres : intérieur = 250 nm, extérieur = 330 nm, une période de 600 nm dans une couche d'or opaque d'épaisseur 150 nm.

La courbe théorique a été tracée à l'aide du code FDTD mis en place dans l'équipe nano-optique du département d'optique de l'institut FEMTO-ST. Nous le décrivons dans la suite de ce manuscrit. Cette courbe donne un pic de forte intensité dans l'infra-rouge et un pic plus petit dans le visible. Les deux pics correspondent au mode TE_{11} de la cavité annulaire. Le pic le plus important est identifié au mode fondamental, le pic dans le visible au premier harmonique de ce mode. C'est ce dernier qui est expérimentalement mesuré. Le spectre expérimental est obtenu en faisant le rapport de l'intensité de la lumière transmise par la matrice par l'intensité de la lumière transmise par une référence. Sur la figure 1.9, la flèche indique la matrice employée pour l'expérience, la référence étant prise à travers le triangle creusé dans la couche d'or. On note la propriété importante de cette matrice pour le filtrage de la lumière puisqu'elle apparaît de couleur rouge.

Le pic atteint un niveau de transmittance de 17% pour une longueur d'onde d'environ 700 nm. C'est le premier résultat expérimental d'une transmission exaltée dans le visible.

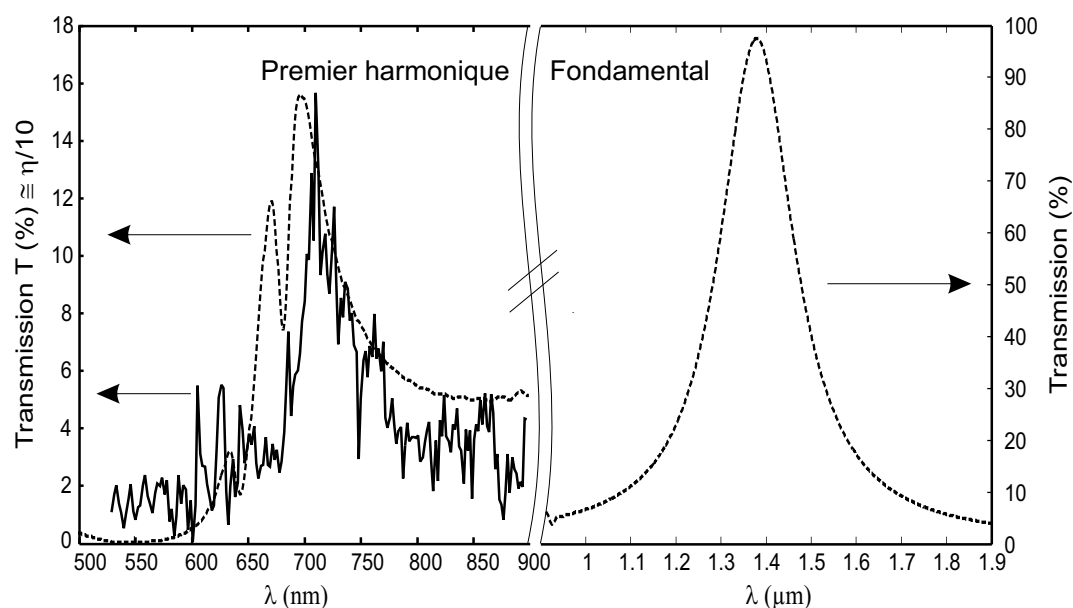


Figure 1.8 – Transmissions théorique (pointillés) et expérimentale (trait plein) de la matrice d’ouvertures annulaires fabriquée dans une couche de 150 nm d’épaisseur d’or avec un diamètre intérieur égal à 250 nm, un diamètre extérieur de 330 nm et une période de 600 nm. La courbe de gauche représente le premier harmonique du mode de cavité TE_{11} , celle de droite le mode fondamental.

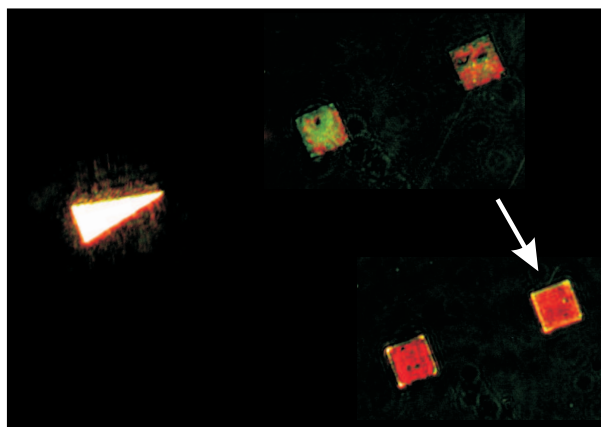


Figure 1.9 – Image obtenue avec un microscope optique classique fonctionnant en transmission des structures étudiées (grossissement : 50). La structure étudiée est indiquée par la flèche. L’intensité enregistrée à travers le triangle donne la référence du spectre expérimental.

Le facteur η sur la courbe 1.8 représente la transmissivité de l’ouverture, à savoir la transmittance normalisée par un facteur de surface [80]. Ce facteur correspond au pourcentage de surface ouverte par rapport à la surface totale de la matrice. Par exemple, dans le cas

de nos ouvertures annulaires, la surface de la période est égale à $p \times p$ soit une surface de 36.10^4 nm^2 et la surface de l'ouverture à $\frac{\pi D_e^2}{4} - \frac{\pi D_i^2}{4}$ soit une surface de 36424 nm^2 . Le facteur de surface est alors égal à 9,88 arrondi à 10. La transmittance de la lumière à travers des ouvertures sub-longueurs d'onde est qualifiée d'extraordinaire si η est supérieur à 1 : pour une ouverture d'environ 10% de la surface, il y a plus de 17% de lumière transmise ! Le flux de photons transmis par unité de surface est plus important que celui de photons incidents par unité de surface. Voilà ce qui caractérise une transmission exaltée de la lumière.

1.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons explicité les deux grands phénomènes qui conduisent à la transmission extraordinaire de la lumière à travers des ouvertures sub-longueurs d'onde dans des métaux. Le premier, celui concernant la résonance plasmon, est à l'origine de l'intérêt croissant pour les nano-ouvertures. Le deuxième concerne l'analyse des modes de cavité dans les ouvertures sub-longueurs d'onde, en particulier ceux des cavités annulaires. Ces nouvelles cavités sont prometteuses sur le plan des applications grâce à leur capacité à transmettre la lumière dans de fortes proportions comme nous le montrerons dans la suite de ce manuscrit. Les applications qui en découlent sont nombreuses dans des domaines aussi variés que les composants électro-optiques ou l'analyse biologique. Le tableau 1.1 récapitule certains résultats sur les transmissions exaltées. La transmission la plus importante a été obtenue à l'aide de cavités annulaires. On remarque qu'il y a peu de résultats dans la partie spectrale visible de la lumière. Cela provient des difficultés technologiques pour réaliser des structures avec des paramètres géométriques permettant la transmission dans cette partie du spectre.

De nouvelles cavités utilisant les matériaux modernes que sont les tubes de carbone existent [81, 82]. Ces cavités sont les plus longues fabriquées puisqu'elles mesurent $6 \mu\text{m}$. L'âme de la cavité est un nano-tube de carbone de 100 nm de diamètre. La partie extérieure est un film de chrome d'environ 150 nm d'épaisseur. Ces deux parties sont séparées par une couche d'oxide d'aluminium (Al_2O_3) de 100 nm d'épaisseur servant de diélectrique. En terme de technologie, ce travail est intéressant. Ces guides ont été testés en lumière visible avec un laser à 532 nm et un autre à 680 nm ; à chaque fois sous incidence normale. Dans chaque cas, de la lumière a été observée en transmission. L'explication donnée par

Tableau 1.1 – Tableau comparatif de quelques résultats expérimentaux sur les transmissions exaltées.

	Transmission (%)	Domaine	Explication physique	Forme
Ebbesen <i>et al.</i> [5]	10	Visible	Couplage plasmons	Trou
Thio <i>et al.</i> [43]	20	Infra-rouge	Couplage plasmon	Trou
Fan <i>et al.</i> [77]	80	Infra-rouge	Mode guidé	Anneau
Salvi <i>et al.</i> [79]	20	Visible	Mode guidé	Anneau
Wang <i>et al.</i> [49]	30	Infra-rouge	Couplage plasmon	Trou
Ekinici <i>et al.</i> [57]	40	Ultraviolet	Couplage plasmon	Trou

les auteurs repose sur l'excitation d'un mode de cavité : le mode TEM. Or celui-ci ne peut être excité sous incidence normale à cause de la symétrie circulaire de la cavité [83].

Pour finir, des travaux ont effectué la comparaison entre une cavité à base circulaire et une cavité à base annulaire. Ces cavités sont utilisées pour amplifier le champ issu d'une diode laser à cavité verticale émettant par la surface ou Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser (VCSEL) [84] ou celui d'un laser à très petite ouverture ou Very Small Aperture Laser (VSAL) [85]. Sur la face émettrice, une cavité annulaire ou circulaire a été rajoutée. Dans les deux cas, le champ émis, soit par le VCSEL nanostructuré, soit par le VSAL nanostructuré, est augmenté par l'intermédiaire d'un facteur d'exaltation dû à cette cavité. Dans la première référence, les mesures effectuées en champ proche indiquent une multiplication par 2 des facteurs d'amplification de l'ouverture annulaire par rapport à l'ouverture circulaire. De plus, la deuxième référence fait une comparaison entre une ouverture cylindrique de base circulaire et une ouverture cylindrique de base annulaire. Les résultats montrent les avantages certains de la deuxième sur la première : le faisceau lumineux produit est plus confiné et son intensité est plus grande d'un facteur 1,34.

La forme annulaire procure des avantages indéniables sur la forme circulaire, en particulier sur le niveau de l'intensité transmise, qui est beaucoup plus élevé. Le but de cette thèse est de poursuivre et de développer les connaissances théoriques et expérimentales concernant cette géométrie annulaire. Notamment en ramenant le fondamental du mode TE_{11} [79] dans le visible plutôt que le premier harmonique pour avoir une transmission pratiquement totale. Ceci peut être réalisé en remplaçant l'or par de l'argent.

Chapitre 2

Outil numérique pour la simulation des nano-structures

2.1 Introduction

La plupart des modèles développés dans la physique moderne reposent essentiellement sur des simulations numériques. En effet, la complexité des phénomènes étudiés ne permet plus l'étude simple de ceux-ci. Les codes mis en place doivent impérativement traduire la réalité physique du phénomène. En ce qui nous concerne, il s'agit d'étudier l'interaction matière-rayonnement à l'échelle sub-longueur d'onde. De ce fait, les milieux considérés sont principalement caractérisés par leurs propriétés diélectriques. Par conséquent, l'anisotropie et la dispersion doivent être intégrées dans les modèles utilisés. Les diélectriques et les métaux utilisés dans le cadre de cette étude sont supposés isotropes. Ainsi, seule la dispersion des métaux nobles sera à intégrer dans les codes numériques. Dans ce chapitre, nous expliciterons en détail les modèles de dispersion adaptés à la description de la dispersion des métaux. Ensuite, nous donnerons un descriptif assez détaillé du code que nous avons utilisé au cours de cette thèse. Enfin, nous décrirons l'influence des paramètres géométriques (périodicité, rayons des ouvertures et épaisseur du métal) sur la transmission. Une étude en fonction de la polarisation du faisceau incident sera également présentée.

2.2 Position et hypothèses de travail

La finalité du code numérique est de donner la forme du champ électromagnétique transmis par une couche métallique percée d'ouvertures annulaires, la couche de métal étant illuminée par une onde plane progressive homogène sous incidence normale. Temporellement, cette onde peut être infinie (onde monochromatique) ou impulsionnelle avec une certaine durée du paquet d'ondes (large spectre). Il est clair que, pour une étude spectrale de la transmission, on considérera une largeur temporelle permettant de couvrir l'intervalle spectral souhaité.

Le code développé au laboratoire est basé sur la méthode des différences finies dans le domaine temporel : *Finite Difference Time Domain* (FDTD). Ce code est écrit en langage Fortran. Il permet de résoudre numériquement les équations de Maxwell via une double discrétisation de l'espace et du temps. Ainsi, les opérateurs de dérivée partielle apparaissant dans les équations de Maxwell seront remplacés par des différences finies centrées. En raison de la géométrie des objets modélisés, un code 3D a été développé. Avant de décrire un peu plus en détails la méthode, nous donnons les hypothèses de travail prises en compte.

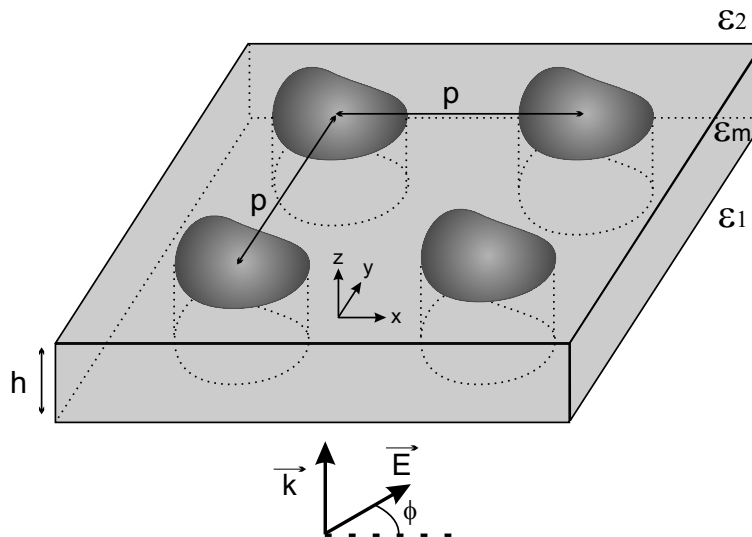


Figure 2.1 – Schéma de principe de la structure modélisée par FDTD : h représente l'épaisseur de la couche métallique, p la période suivant les directions x et y , ε_1 la constante diélectrique du substrat, ε_m celle du métal et ε_2 celle du superstrat. La polarisation de l'onde incidente est donnée par l'angle ϕ compté à partir de l'axe des x .

Dans ce qui suit et par hypothèse, la réponse du matériau est considérée comme

linéaire. Par conséquent, les équations de Maxwell ne feront intervenir que les termes linéaires (en fréquence) pour le champ électromagnétique. De plus, les matériaux modélisés ne sont pas magnétiques, ainsi la perméabilité magnétique est celle du vide, égale à μ_0 . La permittivité diélectrique des milieux étudiés intègre leur comportement conducteur lorsque ce dernier existe. Ceci permet de ne pas tenir compte du vecteur de densité de courant dans l'écriture des équations de Maxwell. En tenant compte de ces hypothèses, ces dernières s'écrivent :

l'équation de Maxwell-Gauss :

$$\operatorname{div}(\vec{D}) = 0 \quad (2.1)$$

l'équation de conservation du flux magnétique :

$$\operatorname{div}(\vec{B}) = 0 \quad (2.2)$$

l'équation de Maxwell-Faraday :

$$\operatorname{rot}(\vec{E}) = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2.3)$$

et l'équation de Maxwell-Ampère :

$$\operatorname{rot}(\vec{H}) = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (2.4)$$

Les champs \vec{E} , \vec{B} , \vec{D} et \vec{H} sont reliés par les équations constitutives habituelles :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E} = \varepsilon \vec{E} \quad (2.5)$$

et

$$\vec{H} = \frac{\vec{B}}{\mu_0} \quad (2.6)$$

Le terme ε_0 est la permittivité du vide. ε_r est un terme extrêmement important car il traduit les propriétés spectrales du matériau dispersif, en l'occurrence dans notre cas le métal (or ou argent), par rapport à l'excitation d'un champ électromagnétique. Pour chaque longueur d'onde, il peut s'écrire sous forme d'un nombre complexe où la partie réelle correspond à la composante propagative du champ à l'intérieur du matériau et la partie imaginaire à l'absorption du champ par le matériau [86, 87].

Comme mentionné précédemment, l'éclairage de la structure est effectué à l'aide d'une onde plane sous incidence normale. La bipériodicité de la structure permet de réduire la

fenêtre de calcul à un motif élémentaire, à savoir une période selon x et y . La périodicité réelle du champ électromagnétique est assurée par les conditions de périodicité suivantes :

$$\begin{aligned}\vec{E}(x+p, y, z, t) &= \vec{E}(x, y, z, t) \\ \vec{E}(x, y+p, z, t) &= \vec{E}(x, y, z, t) \\ \vec{H}(x, y, z, t) &= \vec{H}(x+p, y, z, t) \\ \vec{H}(x, y, z, t) &= \vec{H}(x, y+p, z, t)\end{aligned}$$

Ainsi, la structure modélisée correspond à un réseau infini dans les deux directions x et y . Par contre, selon la direction z , aucune périodicité n'apparaît. Il est alors nécessaire d'appliquer des conditions de bords permettant d'annihiler les réflexions parasites sur les limites de la fenêtre de calcul. Ces conditions de bords seront explicitées dans la suite de ce chapitre.

Suite à la discrétisation de l'espace et du temps, des différences centrées sont employées pour la résolution des équations de Maxwell. Nous avons donc besoin de définir ces différences centrées. Pour cela, considérons une fonction f continue et dérivable. Cette fonction dépend du temps et de l'espace : $f(x, y, z, t)$. L'espace et le temps sont découpés selon un maillage particulier. Chaque point de ce maillage est appelé nœud de calcul. Lorsque cette fonction est numérisée, seules certaines valeurs particulières sont utiles : les valeurs au nœud de calcul. La fonction évaluée au nœud de coordonnées (i, j, k) et à l'instant n s'écrit :

$$f(i\Delta x, j\Delta y, k\Delta z, n\Delta t) = f_{i,j,k}^n \quad (2.7)$$

où i, j, k et n sont des entiers et $\Delta x, \Delta y, \Delta z$ et Δt sont respectivement les pas de discrétisation spatiaux et temporel du maillage.

Ainsi, on définit les différences centrées dans l'espace (ici, selon la variable x) par :

$$\frac{\partial f}{\partial x}(i\Delta x, j\Delta y, k\Delta z, n\Delta t) = \frac{f_{i+\frac{1}{2},j,k}^n - f_{i-\frac{1}{2},j,k}^n}{\Delta x} + \Theta[(\Delta x)^2] \quad (2.8)$$

et dans le domaine temporel :

$$\frac{\partial f}{\partial t}(i\Delta x, j\Delta y, k\Delta z, n\Delta t) = \frac{f_{i,j,k}^{n+\frac{1}{2}} - f_{i,j,k}^{n-\frac{1}{2}}}{\Delta t} + \Theta[(\Delta t)^2] \quad (2.9)$$

Ces équations nous seront très utiles car elles interviennent pleinement dans la méthode numérique FDTD pour évaluer les dérivées partielles spatiales et temporelles du champ électromagnétique.

La méthode numérique tient compte de toutes ces hypothèses. Nous allons maintenant la décrire.

2.3 Méthode numérique : Finite Difference Time Domain

Au lieu de discrétiser l'équation de Helmholtz, Yee propose, en 1966, la discrétisation des équations de Maxwell-Ampère et de Maxwell-Faraday. Cette discrétisation s'avère beaucoup plus robuste numériquement. Elle permet, en plus, d'obtenir simultanément toutes les composantes du champ électromagnétique.

2.3.1 L'algorithme de Yee

La méthode FDTD résout directement les équations de Maxwell, c'est-à-dire qu'elle donne une valeur numérique pour les composantes du champ électromagnétique (\vec{E}, \vec{H}) . L'algorithme utilisé pour arriver à ces composantes, et dont les principales étapes sont décrites ci-dessous, a été développé par Yee [88].

Maillage spatial et temporel

Le maillage spatial concerne tout d'abord la structure elle-même et par voie de conséquence la permittivité des matériaux la composant. Bien entendu, il concerne aussi les composantes du champ électromagnétique. Une maille élémentaire est représentée sur la figure 2.2. Ce maillage représente un espace fini et borné de forme parallélépipédique. Chaque point de la maille est repéré par ses coordonnées (i, j, k) , un sommet du parallélépipède. Le volume total de la structure sous étude devient une superposition de $(n_x - 1) \times (n_y - 1) \times (n_z - 1)$ parallélépipèdes élémentaires de volume $\Delta x \times \Delta y \times \Delta z$ chacun. Ceci revient à considérer un ensemble de $n_x \times n_y \times n_z$ nœuds. La distance entre deux nœuds consécutifs est égale au pas de discrétisation Δx , Δy ou Δz , respectivement pour les directions x , y ou z .

Notons que la valeur du pas de discrétisation selon une ou plusieurs directions peut

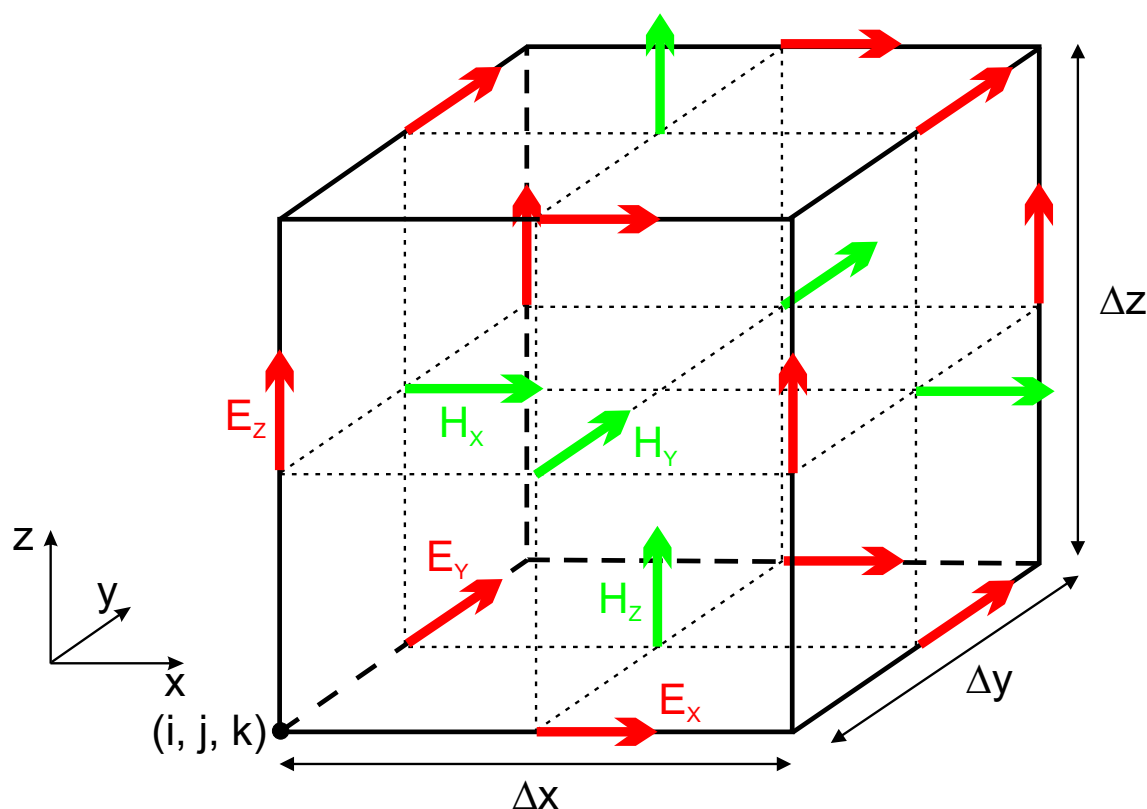


Figure 2.2 – Représentation des composantes des champs électriques et magnétiques dans la cellule élémentaire de Yee. Les composantes indiquées sur la figure correspondent à celles de la cellule (i, j, k) ; les autres composantes tracées sur la figure sont celles des cellules adjacentes. La taille de la cellule est donnée par Δx , Δy et Δz respectivement pour les directions x , y et z .

varier soit pour affiner la précision de la connaissance du champ autour de zones importantes, soit pour décrire au mieux les détails géométriques fins de la structure (figure 2.3).

Un maillage spatialement non-uniforme est utilisé. Dans le cas présent, le pas diminue au voisinage et dans la couche métallique car, dans celle-ci, le champ est fortement modifié (discontinuité de la composante normale du champ électrique). Bien entendu, l'évolution du pas de discrétisation ne peut se faire de façon abrupte et rapide sinon on observe des « réflexions numériques » inhérentes à la définition des différences centrées. La diminution du pas doit se faire de façon continue et progressive comme l'indique la figure 2.4.

À partir de la figure 2.2, on remarque que les composantes du champ électrique ne sont pas calculées aux mêmes nœuds que celles du champ magnétique. Ceci a pour effet

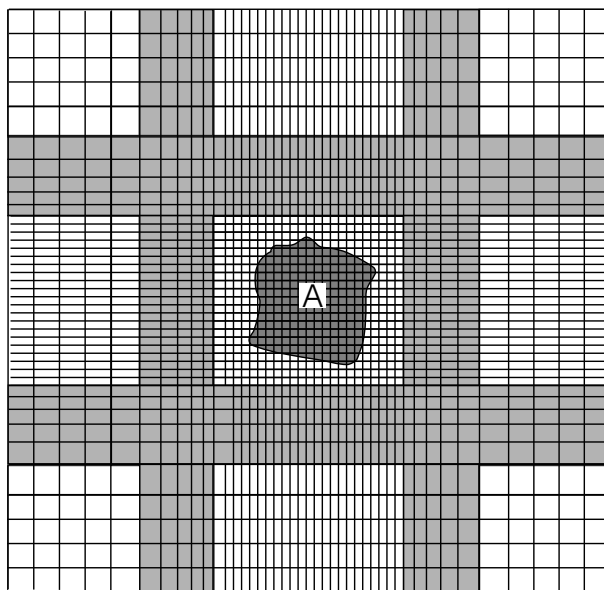


Figure 2.3 – Évolution du pas d'incrémentation dans le plan xy autour de l'objet.

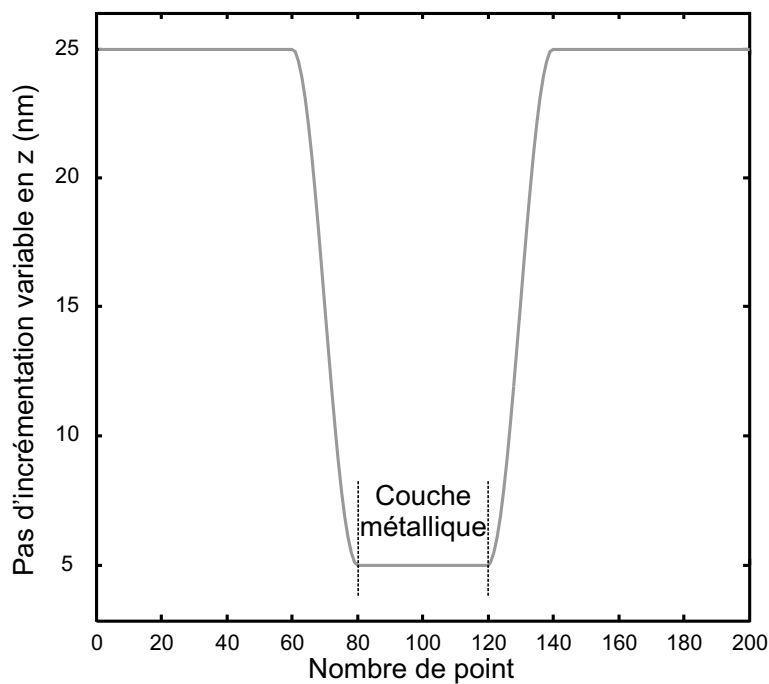


Figure 2.4 – Évolution du pas d'incrémentation sur la direction z pour permettre une connaissance plus fine de l'évolution du champ électromagnétique autour de la couche métallique. La diminution du pas se fait sur 20 nœuds spatiaux.

d'induire une incertitude intrinsèque à l'algorithme FDTD. De plus, le maillage a été conçu pour que chaque composante d'un champ soit entourée par quatre composantes de l'autre champ. Par exemple, lorsque l'on regarde la figure 2.2, la composante H_x de la

maille (i, j, k) est entourée de la composante E_y de la maille (i, j, k) , de celle de la maille $(i, j+1, k)$ ainsi que des composantes E_z des mailles (i, j, k) et $(i, j, k+1)$. Le raisonnement est identique pour les composantes du champ électrique en fonction de celles du champ magnétique. Ce maillage ne fait que traduire les équations 2.3 et 2.4 et montre clairement la traduction géométrique de l'opérateur rotationnel.

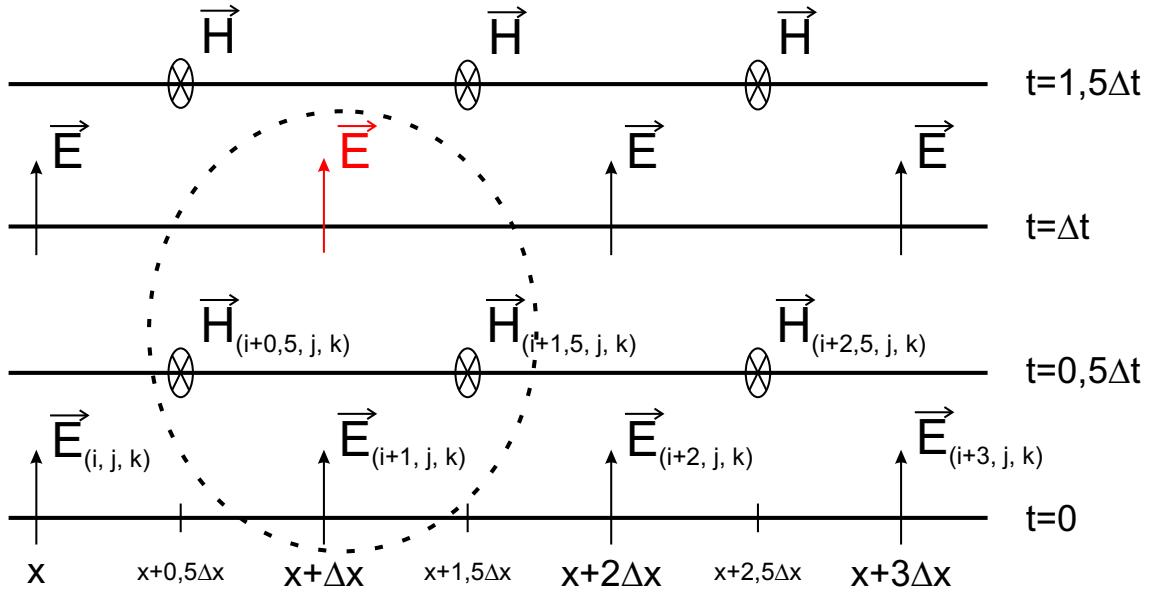


Figure 2.5 – Évolution temporelle du calcul des composantes du champ électromagnétique pour une dimension dans l'algorithme de Yee. L'évolution spatiale entre les champs électriques et magnétiques est donnée sur l'axe horizontal ; l'évolution temporelle sur l'axe vertical. Dans le cercle, on indique les champs nécessaires pour le calcul du champ en rouge.

Dans l'algorithme de Yee, le temps est également discrétisé comme l'indique la figure 2.5. Le calcul des composantes des champs dans le domaine temporel se fait à la manière dite du « saute-mouton ». Le calcul des composantes du champ électrique et celles du champ magnétique se fait de façon alternée. Le champ électrique à l'instant $n\Delta t$ dépend du champ électrique à l'instant $(n-1)\Delta t$ mais également du champ magnétique à l'instant $(n - \frac{1}{2})\Delta t$. De même, le champ magnétique à l'instant $(n + \frac{1}{2})\Delta t$ va dépendre de celui à l'instant $(n - \frac{1}{2})\Delta t$, mais également du champ électrique à $n\Delta t$. Bien entendu, toutes les composantes des champs sont nulles à l'instant $t = 0$ de la simulation sauf à l'endroit où se situe la source.

À tout moment, le programme doit rester stable numériquement. Pour cela, des conditions sur les valeurs maximales que peuvent prendre les pas de discrétisation spatiaux et

temporel sont déterminées [89]. La condition sur le pas spatial est déduite à partir de tests de convergence sur la vitesse de phase d'une onde plane se propageant dans la fenêtre de calcul. Le pas temporel, quant à lui, admet une valeur maximale déduite à partir de la relation de dispersion numérique liée au maillage spatial. Les deux conditions de stabilité utilisées dans notre code numérique sont les suivantes :

$$\max(\Delta x, \Delta y, \Delta z) \leq \frac{\min(\lambda)}{20} \quad (2.10)$$

$$\Delta t \leq \frac{\min(\Delta x, \Delta y, \Delta z)}{2c} \quad (2.11)$$

où λ représente la longueur d'onde de la plage spectrale étudiée et c représente la célérité de la lumière. Ces conditions sont des formules approchées de celles plus complexes données par la référence [89]. Elles ont été obtenues à partir des nombreux tests de convergence que nous avons effectués.

La limite du pas spatial donnée par l'équation 2.10 correspond à une erreur relative sur la vitesse de phase d'environ 0,2%. Ceci implique une incertitude relative sur la valeur de la permittivité diélectrique des milieux considérés de 0,4%. Cette dernière valeur reste tout à fait acceptable dans le cadre de nos simulations.

Maintenant que les paramètres du maillage sont complètement définis, explicitons les équations pour les différentes composantes du champ électromagnétique.

Détermination des composantes du champ électromagnétique

Chaque vecteur du champ électromagnétique possède, en général, trois composantes spatiales qui dépendent de l'espace et du temps. Il nous faut donc 6 équations indépendantes pour déterminer intégralement ces composantes. Pour cela, on utilise les équations de Maxwell-Faraday 2.3 et Maxwell-Ampère 2.4 qui font intervenir, à la fois, le temps et l'espace. Lorsque l'on développe ces équations en tenant compte de la relation constitutive 2.6, on obtient le système suivant :

$$\frac{\partial H_x}{\partial t} = \frac{1}{\mu_0} \left(\frac{\partial E_y}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial y} \right) \quad (2.12)$$

$$\frac{\partial H_y}{\partial t} = \frac{1}{\mu_0} \left(\frac{\partial E_z}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial z} \right) \quad (2.13)$$

$$\frac{\partial H_z}{\partial t} = \frac{1}{\mu_0} \left(\frac{\partial E_x}{\partial y} - \frac{\partial E_y}{\partial x} \right) \quad (2.14)$$

$$\frac{\partial D_x}{\partial t} = \left(\frac{\partial H_z}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial z} \right) \quad (2.15)$$

$$\frac{\partial D_y}{\partial t} = \left(\frac{\partial H_x}{\partial z} - \frac{\partial H_z}{\partial x} \right) \quad (2.16)$$

$$\frac{\partial D_z}{\partial t} = \left(\frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} \right) \quad (2.17)$$

À l'aide du maillage de l'algorithme de Yee, décrit précédemment, et de la transformation des dérivées partielles en différences centrées, ce système s'écrit dorénavant dans notre code de simulation :

$$H_x|_{(i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} = H_x|_{(i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2})}^{n-\frac{1}{2}} + \frac{\Delta t}{\mu_0} \left(\frac{E_y|_{(i,j+\frac{1}{2},k+1)}^n - E_y|_{(i,j+\frac{1}{2},k)}^n}{\Delta z} - \frac{E_z|_{(i,j+1,k+\frac{1}{2})}^n - E_z|_{(i,j,k+\frac{1}{2})}^n}{\Delta y} \right) \quad (2.18)$$

$$H_y|_{(i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} = H_y|_{(i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2})}^{n-\frac{1}{2}} + \frac{\Delta t}{\mu_0} \left(\frac{E_z|_{(i+1,j,k+\frac{1}{2})}^n - E_z|_{(i,j,k+\frac{1}{2})}^n}{\Delta x} - \frac{E_x|_{(i+\frac{1}{2},j,k+1)}^n - E_x|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n}{\Delta z} \right) \quad (2.19)$$

$$H_z|_{(i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}} = H_z|_{(i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k)}^{n-\frac{1}{2}} + \frac{\Delta t}{\mu_0} \left(\frac{E_x|_{(i+\frac{1}{2},j+1,k)}^n - E_x|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n}{\Delta y} - \frac{E_y|_{(i+1,j+\frac{1}{2},k)}^n - E_y|_{(i,j+\frac{1}{2},k)}^n}{\Delta x} \right) \quad (2.20)$$

$$D_x|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^{n+1} = D_x|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n + \Delta t \left(\frac{H_z|_{(i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}} - H_z|_{(i+\frac{1}{2},j-\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta y} - \frac{H_y|_{(i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_y|_{(i+\frac{1}{2},j,k-\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta z} \right) \quad (2.21)$$

$$D_y|_{(i,j+\frac{1}{2},k)}^{n+1} = D_y|_{(i,j+\frac{1}{2},k)}^n + \Delta t \left(\frac{H_x|_{(i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_x|_{(i,j+\frac{1}{2},k-\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta z} - \frac{H_z|_{(i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}} - H_z|_{(i-\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta x} \right) \quad (2.22)$$

$$D_z|_{(i,j,k+\frac{1}{2})}^{n+1} = D_z|_{(i,j,k+\frac{1}{2})}^n + \Delta t \left(\frac{H_y|_{(i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_y|_{(i-\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta x} - \frac{H_x|_{(i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_x|_{(i,j-\frac{1}{2},k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta y} \right) \quad (2.23)$$

Dans le cas d'un milieu dispersif, nous sommes obligés de garder l'équation avec le vecteur excitation électrique. En effet, la relation constitutive 2.5 s'écrit dans le domaine fréquentiel et non temporel, on a donc $\vec{D}(\omega) = \varepsilon(\omega)\vec{E}(\omega)$. L'algorithme FDTD, opérant dans le temps, impose une relation constitutive temporelle qui s'écrit, alors, sous la forme d'un produit de convolution : $\vec{D}(t) = \varepsilon(t) \otimes \vec{E}(t)$. Il s'agit donc d'une relation non-locale qui nécessite, pour son évaluation, la connaissance du champ électrique à tous les instants antérieurs. Ceci conduit, numériquement, au stockage d'un très grand nombre de données et nécessite, par conséquent, d'avoir une place mémoire vive très importante. On verra, par la suite, que l'écriture analytique -lorsqu'elle existe- de la permittivité diélectrique permet de contourner ce problème purement numérique. Il est donc obligatoire de passer par le calcul du vecteur $\vec{D}(t)$ pour obtenir la valeur des composantes du champ électrique.

Pour le cas de l'argent et de l'aluminium, le modèle de Drude donne une forme analytique suffisante pour la permittivité diélectrique. Pour le cas de l'or, la méthode dite des accumulateurs récursifs donne le lien analytique et permet, ainsi, le calcul direct du champ électrique. Le modèle de Drude, ainsi que la méthode des accumulateurs récursifs, sont présentés dans le chapitre suivant.

Nous connaissons maintenant les valeurs des composantes du champ électromagnétique. Il reste à résoudre le problème des réflexions possibles de l'onde sur les bords de la fenêtre de calcul. En effet, les composantes du champ ne seront jamais calculées sur les limites de la fenêtre de calcul. À 3D, la fenêtre de calcul est en général un parallélépipède rectangle, dont les limites de la fenêtre sont les six faces de ce dernier. Sachant qu'initialement toutes les composantes sont fixées à zéro, ces dernières restent nulles sur les six faces déjà mentionnées. Elles se comportent, donc, comme des miroirs parfaits. L'onde réfléchiée par ces faces modifie le champ électromagnétique physique et conduit à un résultat artefactuel. Le but du paragraphe suivant est de traiter ce problème de réflexion parasite.

2.3.2 Conditions de bords : couches absorbantes

Les premières solutions apportées à ce problème ont été proposées par Engquist et Majda dès 1977 [90]. Ils utilisaient des opérateurs aux dérivés partiels, des d'alembertiens (au signe près), pour optimiser l'absorption des faces qui constituent les limites de la fenêtre de calcul. En 1981, Mur a adapté cette méthode au schéma des différences finies [91]. Des solutions à l'ordre 1 et à l'ordre 2 ont été développées, dans lesquelles les composantes tangentielles du champ électromagnétique sur les faces de la fenêtre de calcul sont exprimées en fonction des composantes voisines spatialement (un pas spatial pour l'ordre 1, deux pas spatiaux pour l'ordre 2) et temporellement (deux pas temporels quelque soit l'ordre). Signalons que l'intégration de ces conditions aux limites dans le code FDTD est très simple mais que celles-ci ne fonctionnent correctement que pour des incidences proches de la normale.

La solution idéale consiste à ce que notre fenêtre de calcul devienne une chambre anéchoïque pour l'onde électromagnétique qui s'y propage. C'est ainsi qu'en 1994, Bérenger [92] propose une méthode consistant à entourer la fenêtre de calcul par un milieu conducteur, ayant une conductivité électrique σ et une perte magnétique σ^* . Cette méthode se nomme la méthode des couches parfaitement adaptées ou *Perfectly Matched Layers* (PML). Le milieu PML présente deux propriétés essentielles : une adaptation d'impédance avec le milieu du domaine principal de calcul et une absorption qui augmente en fonction de la distance à l'interface. La première propriété conduit à une parfaite transmission de l'onde incidente sur l'interface indépendamment de l'angle d'incidence. La deuxième propriété est nécessaire pour limiter l'épaisseur de la PML tout en minimisant la réflexion due, dans ce cas, aux bords extérieurs de la PML. Notre objet est périodique

selon les directions x et y . Nous avons besoin de la PML uniquement suivant la direction z . La figure 2.6 donne un aperçu de la configuration employée dans notre code avec la mise en place des couches PML selon la direction verticale.

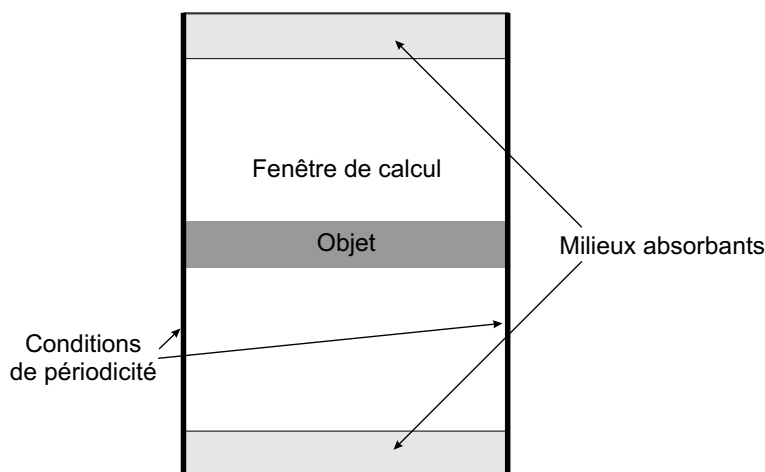


Figure 2.6 – Position des couches absorbantes autour de la fenêtre de calcul dans le cadre de la méthode de Bérenger.

Pour simplifier la description et la discussion, nous exposerons le détail des calculs des composantes du champ électromagnétique dans le cas 2D et pour une polarisation comme présentée sur la figure 2.7.

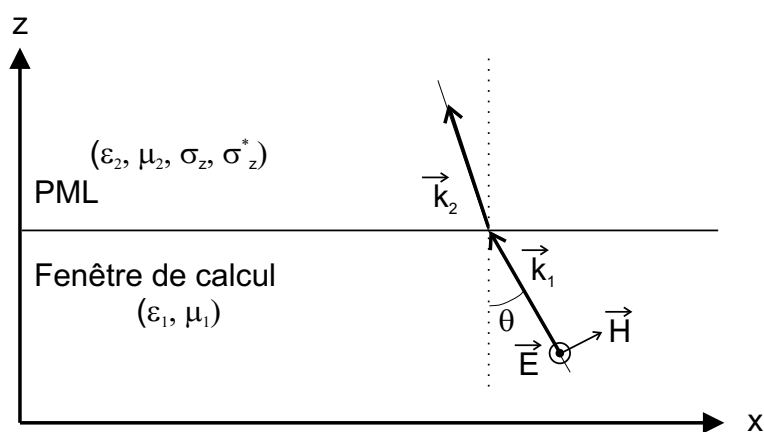


Figure 2.7 – Schéma de principe du calcul pour le mode TE du champ électromagnétique dans le milieu absorbant.

En tenant compte des propriétés de conduction du milieu PML et en utilisant les équations constitutives 2.5 et 2.6, les équations de Maxwell-Faraday et Maxwell-Ampère deviennent :

$$\frac{\partial \vec{H}}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_2} \overrightarrow{rot}(\vec{E}) - \frac{1}{\mu_2} \sigma_z^* \vec{H} \quad (2.24)$$

$$\frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = \frac{1}{\varepsilon_2} \overrightarrow{rot}(\vec{H}) - \frac{1}{\varepsilon_2} \sigma_z \vec{E} \quad (2.25)$$

En considérant une dépendance temporelle en $e^{-i\omega t}$, les équations 2.24 et 2.25 se développent de la façon suivante :

$$i\omega\varepsilon_2 E_y = \frac{\partial H_z}{\partial x} \quad (2.26)$$

$$-i\omega\varepsilon_2 \left(1 + \frac{\sigma_z}{i\omega\varepsilon_2}\right) E_y = \frac{\partial H_x}{\partial z} \quad (2.27)$$

$$-i\omega\mu_2 \left(1 + \frac{\sigma_z^*}{i\omega\mu_2}\right) H_x = \frac{\partial E_y}{\partial z} \quad (2.28)$$

$$i\omega\mu_2 H_z = \frac{\partial E_y}{\partial x} \quad (2.29)$$

Les composantes des champs dans le milieu PML peuvent donc être déterminées. La combinaison de la règle de continuité de la composante tangentielle E_y avec celle de la composante H_x permet d'écrire le coefficient de réflexion r au niveau de l'entrée de la PML :

$$r = \frac{\frac{k_{1z}}{\omega\mu_1} - \frac{k_{2z}}{\omega\mu_2} \sqrt{\frac{s_z}{s_z^*}}}{\frac{k_{1z}}{\omega\mu_1} + \frac{k_{2z}}{\omega\mu_2} \sqrt{\frac{s_z}{s_z^*}}} \quad (2.30)$$

dans laquelle $s_z = 1 + \frac{\sigma_z}{i\omega\varepsilon_2}$ et $s_z^* = 1 + \frac{\sigma_z^*}{i\omega\mu_2}$. Les conditions à remplir par le milieu PML sont d'avoir $r = 0$ et une parfaite adaptation d'impédance. Ceci peut être réalisé avec les hypothèses suivantes :

- $\varepsilon_1 = \varepsilon_2$;
- $\mu_1 = \mu_2$;
- $s_z = s_z^*$ soit $\frac{\sigma_z}{\varepsilon_2} = \frac{\sigma_z^*}{\mu_2}$.

Cette dernière condition impose, dans notre cas de figure, l'égalité entre les composantes des vecteurs d'onde suivant l'axe z : $k_{1z} = k_{2z}$.

Lorsque ces hypothèses sont vérifiées, la deuxième condition sur l'absorption des champs peut, à son tour, être validée. En effet, chaque composante de champ est alors multipliée par un facteur $e^{-\sigma_z \eta \cos(\theta) z}$, qui engendre la décroissance rapide de celles-ci. η est l'impédance caractéristique du milieu définie par $\eta = \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon}}$.

Une remarque importante doit être donnée : la PML, dans sa version de base développée ici, ne permet l'élimination que des ondes homogènes. Cette méthode n'empêche aucunement la réflexion des ondes évanescentes. Pour contourner ce problème, il est nécessaire de placer l'objet métallique suffisamment loin des limites de la couche PML. Ainsi, nous avons constaté qu'une distance minimale de $\frac{\lambda_{max}}{2}$ par rapport à l'objet est suffisante pour éliminer l'effet néfaste de ces ondes évanescentes. λ_{max} représente la valeur maximale de la plage spectrale étudiée. Par exemple, si l'étude porte sur une plage de 400 à 2000 nm, alors la distance minimale de séparation objet-PML est fixée à 1000 nm, soit 40 nœuds de calcul pour un pas spatial de 25 nm.

2.4 Modèles de dispersion des métaux

Nous cherchons à modéliser le phénomène de transmission exaltée de la lumière à travers des couches métalliques nanostructurées. Il est donc primordial de tenir compte des propriétés de dispersion du métal, surtout que ces dernières sont importantes dans le domaine optique. Comme nous l'avons déjà expliqué, l'algorithme FDTD nécessite l'introduction d'un modèle analytique pour la dispersion. Dans le cadre de ce travail, nous avons utilisé et adapté deux modèles : le modèle de Drude dans le cas de l'argent et de l'aluminium, et celui de Drude-Lorentz dans le cas de l'or.

2.4.1 Modèles de Drude et de Drude-Lorentz

Modèle de Drude

En 1900, P. Drude propose une théorie pour expliquer le comportement et les propriétés des métaux. Sa théorie repose sur une hypothèse audacieuse qui consiste à considérer les électrons de conduction du métal comme un gaz d'électrons [93, 94]. La théorie cinétique des gaz est alors appliquée à ce gaz. Les électrons de conduction sont, donc, considérés comme des sphères solides, indéformables et identiques entre elles. De plus, tant que les électrons n'entrent pas en collision les uns avec les autres, leurs déplacements s'effectuent en ligne droite. Ils ont un mouvement rectiligne uniforme. Ainsi, pour Drude, le métal apparaît comme un ensemble dans lequel les électrons de conduction se déplacent librement avec leur charge négative et où les ions, formés du noyau et des électrons de cœur immobiles, sont fixes avec une charge positive. Le métal est bien entendu neutre en terme de charge électrique. Drude apporta quelques hypothèses supplémentaires :

- les interactions entre les électrons (approximation dite «des électrons indépendants») et les ions (approximation dite « des électrons libres ») sont négligées en dehors des collisions ;
- les collisions sont des phénomènes instantanés, donc avec des actions à très courte portée, qui changent brusquement la vitesse de l'électron ;
- chaque collision a lieu, en moyenne, à un intervalle noté τ , appelé temps de libre parcours moyen ou temps de collision ou encore temps de relaxation.

En présence d'un champ électrique extérieur, le mouvement des électrons se modifie et se détermine, simplement, avec le principe fondamental de la dynamique de Newton. Un champ électrique de la forme : $\vec{E} = E_0 e^{-i\omega t} \vec{u}$, où \vec{u} est un vecteur unitaire et ω la pulsation du champ, crée une force de Coulomb sur l'électron. L'équation du mouvement de celui-ci s'écrit selon la direction \vec{u} :

$$\ddot{x}(t) + \gamma \dot{x}(t) = -\frac{e}{m} E(t) \quad (2.31)$$

dans laquelle m est la masse de l'électron, e sa charge et γ un terme d'amortissement égal à l'inverse du temps de libre parcours moyen ($\gamma = 1/\tau$). L'expression $\gamma \dot{x}$ traduit la présence d'une force d'amortissement que l'on peut attribuer aux différentes collisions ou

tout ce qui peut altérer le déplacement de l'électron dans le métal (vibration du réseau, impuretés...).

La solution de cette équation s'écrit : $x = x_0 e^{-i\omega t}$ selon la direction \vec{u} et, en la substituant dans celle-ci en ne tenant compte que du régime permanent, on obtient :

$$x_0(\omega) = \frac{eE(\omega)}{m(\omega^2 + i\gamma\omega)} \quad (2.32)$$

L'oscillation de l'électron induit un moment dipolaire : $\vec{p} = -ex\vec{u}$. Pour un grand nombre N d'électrons par unité de volume, la polarisation $\vec{P} = N\vec{p}$ du métal considéré s'écrit donc :

$$\vec{P}(\omega) = -\frac{Ne^2}{m(\omega^2 + i\gamma\omega)} \vec{E}(\omega) \quad (2.33)$$

La dispersion métallique intervient dans la relation constitutive entre le champ électrique \vec{E} et le vecteur excitation électrique \vec{D} :

$$\vec{D}(\omega) = \varepsilon_0 \vec{E}(\omega) + \vec{P}(\omega) = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E}(\omega) \quad (2.34)$$

En substituant, dans l'équation 2.34, la polarisation par son expression donnée par l'équation 2.33, on obtient la permittivité relative ε_r , réponse du métal à une excitation de pulsation ω :

$$\varepsilon_r = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} \quad (2.35)$$

dans laquelle ω_p est la pulsation plasma définie par $\omega_p^2 = \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0}$. Le lien est maintenant explicité entre les champs électrique et excitation électrique. Dans le domaine des fréquences, la relation entre les deux champs s'obtient grâce à l'équation 2.34 :

$$\omega^2 \vec{D} + i\gamma\omega \vec{D} = \varepsilon_0(\omega^2 \vec{E} + i\gamma\omega \vec{E} - \omega_p^2 \vec{E}) \quad (2.36)$$

En considérant que l'évolution temporelle des deux champs est en $e^{-i\omega t}$, on peut remonter à l'équation aux dérivées partielles dans le temps par simple transformée de Fourier inverse de l'équation 2.36 [95]. Cette équation, dans laquelle les champs dépendent du temps maintenant, est la suivante :

$$\frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} + \gamma \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \varepsilon_0 \left(\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \gamma \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \omega_p^2 \vec{E} \right) \quad (2.37)$$

Les dérivées partielles d'ordre 1 et d'ordre 2 apparaissant dans cette équation sont évaluées par l'intermédiaire de différences finies centrées. En tenant compte de ce modèle, les composantes du champ électrique en fonction des composantes du champ excitation électrique pour la composante $m = x, y$ ou z s'écrivent de la façon suivante :

$$E_x|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n = \frac{4E_x|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^{n-1} + (-\omega_p^2 \Delta t^2 + \gamma \Delta t - 2)E_x|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^{n-2}}{2 + \gamma \Delta t + \omega_p^2 \Delta t^2} + \frac{(2 + \gamma \Delta t)D_x|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n - 4D_x|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^{n-1} + (2 - \gamma \Delta t)D_x|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^{n-2}}{\varepsilon_0(2 + \gamma \Delta t + \omega_p^2 \Delta t^2)} \quad (2.38)$$

L'avantage du modèle de Drude est sa grande simplicité. Dans le cas de l'argent et de l'aluminium, en adaptant la valeur de ω_p et celle de γ , le modèle est suffisant et permet d'appréhender le phénomène physique correctement. Par contre, dans le cas de l'or, il est impossible de trouver une valeur unique pour ω_p et pour γ qui permette l'utilisation de ce modèle dans le domaine du visible. Pour remédier à cela, on rajoute une partie lorentzienne au modèle de Drude pour obtenir celui appelé de Drude-Lorentz.

Modèle de Drude-Lorentz

L'interprétation physique d'un tel modèle est la suivante : le modèle de Drude tient compte uniquement des électrons de conduction du métal, les électrons dits libres, alors que le modèle de Lorentz rajoute la contribution des électrons de cœur, les plus proches du noyau, ou électrons liés. En faisant l'hypothèse que le mouvement est harmonique entre ces électrons et le noyau, on obtient une forme lorentzienne. Dans le cadre du modèle de Drude-Lorentz, la permittivité relative s'écrit :

$$\varepsilon_r = \varepsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} - \frac{\Delta\epsilon.\Omega_l^2}{(\omega^2 - \Omega_l^2) + i\Gamma_l\omega} \quad (2.39)$$

dans laquelle on retrouve les termes déjà définis du modèle de Drude ω_p et γ et où Ω_l et Γ_l représentent, respectivement, la pulsation libre d'oscillation et le coefficient de friction, associés à la courbe de Lorentz. Le terme $\Delta\epsilon$ est interprété comme un facteur de pondération entre les deux parties du modèle et ε_∞ comme une constante permettant d'adapter le modèle aux valeurs expérimentales. L'utilisation de ce modèle permet de s'approcher au mieux des valeurs de dispersion tabulées pour l'or, et, donc, de décrire au mieux le comportement de celui-ci lors d'une interaction avec la lumière [96]. Il avait déjà été démontré que l'association de plusieurs courbes lorentziennes permettait d'obtenir correctement les courbes de dispersion de nombreux métaux [97].

Comme pour le modèle de Drude, on peut remonter à une équation aux dérivées partielles dans le temps par simple transformée de Fourier inverse :

$$\begin{aligned} \frac{\partial^4 \vec{D}}{\partial t^4} + (\gamma + \Gamma_l) \frac{\partial^3 \vec{D}}{\partial t^3} + (\Omega_l^2 + \gamma\Gamma_l) \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} + \gamma\Omega_l^2 \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} &= \varepsilon_\infty \frac{\partial^4 \vec{E}}{\partial t^4} + \\ (\Gamma_l\varepsilon_\infty + \gamma\varepsilon_\infty) \frac{\partial^3 \vec{E}}{\partial t^3} + (\varepsilon_\infty\Omega_l^2 + \varepsilon_\infty\gamma\Gamma_l + \omega_p^2 + \Delta\epsilon\Omega_l^2) \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \\ (\Gamma_l\omega_p^2 + \gamma\Omega_l^2 + \Delta\epsilon\gamma\Omega_l^2) \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \omega_p^2\Omega_l^2 \vec{E} \end{aligned} \quad (2.40)$$

C'est une équation différentielle aux dérivées partielles d'ordre 4. L'utilisation de cette équation a donné, dans les cas que nous avons étudiés, des réponses divergentes. De plus, il est nécessaire de stocker un nombre conséquent de composantes de champ. Le temps de calcul et la place en mémoire deviennent alors énormes. Pour éviter ces problèmes, la méthode dite des accumulateurs récursifs permet d'adapter le modèle et de l'incorporer dans l'algorithme.

2.4.2 Description de l'or : méthode des accumulateurs récursifs

Cette méthode a été développée, en particulier, par Luebbers et Kunz [98]. Son but est d'obtenir une expression simple du champ électrique en fonction des propriétés diélectriques des matériaux considérés, dans notre cas l'or. La méthode utilise la relation

de convolution existant dans le domaine temporel entre le champ électrique et le champ excitation électrique :

$$\vec{D}(t) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^t \varepsilon_r(\tau) \vec{E}(t - \tau) d\tau \quad (2.41)$$

Les calculs qui vont suivre font intervenir les constantes suivantes : $\varphi = \omega_p^2/\gamma$, $\alpha = \Gamma_l/2$, $\beta = \sqrt{\Omega_l^2 - \alpha^2}$ et $\delta = \Delta\varepsilon.\Omega_l^2/\beta$.

Cette équation de convolution peut se transformer et s'écrire à l'instant t :

$$\vec{D}(t) = \varepsilon_\infty \varepsilon_0 \vec{E}(t) + \varepsilon_0 \int_0^t \vec{E}(t - \tau) \chi(\tau) d\tau \quad (2.42)$$

Dans cette équation, le terme $\chi(\tau)$ représente la transformée de Fourier dans le domaine temporel de la permittivité relative totale, somme de celle donnée par le modèle de Drude $\chi_D(\tau)$ et celle donnée par le modèle de Lorentz $\chi_L(\tau)$: $\chi(\tau) = \chi_D(\tau) + \chi_L(\tau)$. La transformée de Fourier de la partie lorentzienne du modèle ne pose aucun problème et on trouve l'expression de $\chi_L(\tau)$:

$$\chi_L(\tau) = -i\delta e^{(-\alpha+i\beta)\tau} H(\tau) \quad (2.43)$$

où $H(\tau)$ est la fonction de Heaviside. Par contre, un problème de causalité se pose pour la transformée de Fourier concernant la partie de Drude. En effet, un pôle de la fonction en $\omega = 0$ fait apparaître un pic de Dirac lors du calcul intégral pour ce point. En première approximation [98], la fonction $\chi_D(\tau)$ s'écrit alors :

$$\chi_D(\tau) = \frac{\varphi}{\gamma} (1 - \varphi e^{-\gamma\tau}) \quad (2.44)$$

Dans le cas de notre discrétisation, l'instant t est égal à $n\Delta t$. En posant par hypothèse que les champs restent constants sur l'intervalle de temps Δ , l'équation 2.42 s'écrit alors pour l'instant $n\Delta t$:

$$\vec{D}^n = \varepsilon_\infty \varepsilon_0 \vec{E}^n + \varepsilon_0 \sum_{m=0}^{n-1} \vec{E}^{n-m} \chi^m \quad (2.45)$$

et pour l'instant $(n+1)\Delta t$:

$$\vec{D}^{n+1} = \varepsilon_\infty \varepsilon_0 \vec{E}^{n+1} + \varepsilon_0 \sum_{m=0}^n \vec{E}^{n-m+1} \chi^m \quad (2.46)$$

m est l'indice de sommation entier positif et χ^m est la somme des deux transformées de Fourier données par les équations 2.43 et 2.44, $\chi^m = \chi_D + \chi_L$.

De plus, l'équation de Maxwell-Ampère donne le lien entre le champ \vec{D} et les champs \vec{H} et \vec{E}

$$\vec{D}^{n+1} = \vec{D}^n + \Delta t \vec{\nabla} \wedge \vec{H}^{n+\frac{1}{2}} - \sigma \vec{E} \quad (2.47)$$

en utilisant le maillage temporel de Yee.

En combinant les équations 2.45, 2.46 et 2.47, le champ électrique à l'instant le plus récent s'écrit en fonction des champs antérieurs :

$$\vec{E}^{n+1} = C_1 \vec{E}^n + C_2 \vec{\nabla} \wedge \vec{H}^{n+\frac{1}{2}} + C_3 \sum_{m=0}^{n-1} \vec{E}^{n-m} \Delta \chi^m \quad (2.48)$$

où $\Delta \chi^m$ est défini comme $\Delta \chi^m = \chi^m - \chi^{m+1}$ avec $\chi^m = \int_{m\Delta t}^{(m+1)\Delta t} \chi(\tau) d\tau$. Les trois constantes sont égales à :

$$C_1 = \frac{\varepsilon_\infty}{\varepsilon_\infty + \chi^0 + \sigma_D \Delta t} \quad (2.49)$$

$$C_2 = \frac{\Delta t}{\varepsilon_0(\varepsilon_\infty + \chi^0 + \sigma_D \Delta t)} \quad (2.50)$$

$$C_3 = \frac{1}{\varepsilon_\infty + \chi^0 + \sigma_D \Delta t} \quad (2.51)$$

L'expression de χ^0 est donnée à la fin de cette partie.

Le nom de la méthode provient du troisième terme de l'équation 2.48. En effet, le nom donné au terme $\sum_{m=0}^{n-1} \vec{E}^{n-m} \Delta \chi^m$, noté $\vec{\Psi}$, est accumulateur récursif. Il se décompose lui-même en deux parties : l'une en rapport avec le modèle de Drude, l'autre avec le modèle de Lorentz. Ce terme se développe ainsi :

$$\vec{\Psi} = \vec{\Psi}_D + \vec{\Psi}_L \quad (2.52)$$

$$\vec{\Psi} = (\Delta \chi_D^0 + \Delta \chi_L^0) \vec{E} + (e^{-\gamma \Delta t} + e^{(-\alpha+i\beta)\Delta t}) \vec{\Psi}^{n-1} \quad (2.53)$$

Après quelques intégrations par parties, les expressions des dernières constantes ap-

paraissent :

$$\chi^0 = \frac{\varphi}{\gamma} (1 - e^{-\gamma\Delta t}) - \frac{i\delta}{\alpha - i\beta} (1 - e^{(-\alpha+i\beta)\Delta t}) \quad (2.54)$$

$$\Delta\chi_D^0 = \frac{\varphi}{\gamma} (1 - e^{-\gamma\Delta t})^2 \quad (2.55)$$

$$\Delta\chi_L^0 = -\frac{i\delta}{\alpha - i\beta} (1 - e^{(-\alpha+i\beta)\Delta t})^2 \quad (2.56)$$

Le champ électrique est parfaitement connu en fonction des caractéristiques de l'or [86, 87] et des champs antérieurs.

On peut faire une remarque importante à ce stade : dans notre code FDTD, et pour des raisons de simplicité, tous les calculs sont effectués en notation complexe ; la méthode que l'on vient d'exposer ne s'applique que sur des réels, il a donc fallu l'adapter dans notre code en l'appliquant successivement sur les parties réelles et imaginaires des composantes du champ électromagnétique. Le calcul de la dispersion devient alors plus lourd que dans le cas où l'on utilise des champs réels mais l'avantage réside dans le calcul des intensités lumineuses qui reste immédiat.

2.5 Applications

Dans ce paragraphe nous allons tout d'abord présenter quelques résultats théoriques obtenus à l'aide de notre code FDTD puis, d'emblée, étudier l'influence des paramètres géométriques sur les propriétés de transmission en champ lointain (position et hauteur du pic).

2.5.1 Exemples de spectre de transmission

Dans cette section, nous essayons de mettre en évidence par un exemple simple la raison pour laquelle nous nous sommes intéressés aux ouvertures coaxiales plutôt qu'aux ouvertures circulaires. Pour cela, considérons un film d'argent d'épaisseur de 100 nm percé par un réseau de trous circulaires de rayon 100 nm. Pour simplifier l'exploitation des résultats, nous allons considérer que ce film est auto-suspendu dans le vide. La période du réseau est alors fixée à 350 nm afin que l'anomalie de Rayleigh et/ou le plasmon de surface de l'interface métal-vidé soient en dehors du spectre du visible. Le spectre de transmission

d'une telle structure est présenté sur la figure 2.8. On voit clairement la présence d'un pic de transmission aux alentours de $\lambda = 490$ nm, pour lequel la transmission atteint 95%.

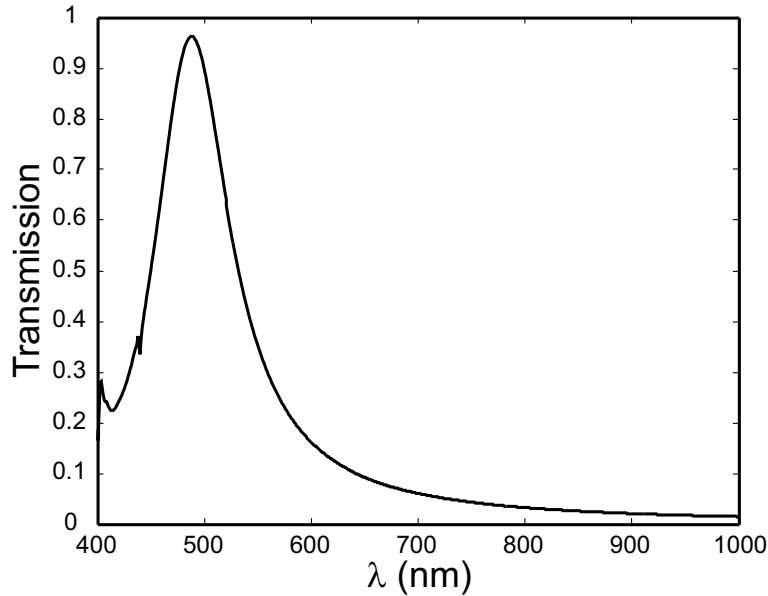


Figure 2.8 – Spectre de transmission d'un réseau d'ouvertures circulaires de diamètre 200 nm, de période 350 nm dans une couche d'argent de 100 nm d'épaisseur.

Ceci est dû à l'excitation et à la propagation d'un mode guidé à travers les cavités cylindriques. Ce mode est le quasi¹-mode TE_{11} du guide cylindrique qui peut être déterminé de façon analogue à celle présentée dans le chapitre précédent pour le guide cylindrique. Maintenant bouchons partiellement les ouvertures circulaires par des cylindres métalliques en argent. La structure obtenue consiste alors en un tamis à ouvertures annulaires de rayon extérieur $R_e = 100$ nm et de rayon intérieur $R_i =$ rayon du cylindre métallique $= 50$ nm. Dans ce cas la surface « transparente » de la structure est réduite, elle passe de $0,0314 \mu\text{m}^2$ à $0,0236 \mu\text{m}^2$ alors que le spectre de transmission présenté sur la figure 2.9 montre un pic aussi important et dont la position correspond à une valeur de la longueur d'onde encore plus grande. Sa longueur d'onde de coupure est déplacée vers le rouge d'une quantité $\Delta\lambda = 160$ nm du fait de la nature réelle du métal [75].

Le mode quasi- TE_{11} du guide coaxial est responsable de cette forte transmission [75]. De plus, et comme dans le cas du métal parfait, la coupure de ce mode a lieu à une longueur d'onde supérieure que celle du mode TE_{11} du guide cylindrique. La configuration annulaire est donc avantageuse.

¹*quasi* car la nature réelle du métal induit une faible composante longitudinale du champ électrique

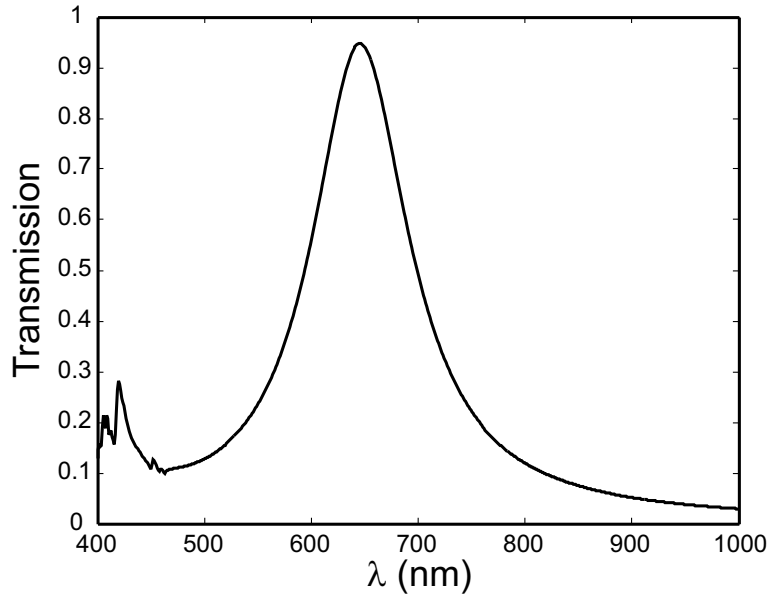


Figure 2.9 – Spectre de transmission d'un réseau d'ouvertures annulaires de diamètre extérieur 200 nm, de diamètre intérieur 100 nm, de période 350 nm dans une couche d'argent de 100 nm d'épaisseur.

On voit donc clairement ici que la transmission à travers les ouvertures annulaires repose sur un phénomène de guidage à travers les cavités et non sur l'excitation du plasmon de surface. Comme on le verra dans la suite, l'apparition de ce dernier peut affecter positivement ou négativement la transmission. Une étude théorique plus profonde reste à mener dans le but de déterminer les paramètres permettant de combiner les deux phénomènes (modes guidés + plasmons de surface) afin d'optimiser la transmission de la structure en vue d'applications bien précises.

Afin d'avoir une comparaison plus objective entre les structures annulaires et les structures circulaires, nous considérons le cas où la surface ouverte est identique. Pour les paramètres géométriques donnés précédemment, ceci conduit à une ouverture circulaire de rayon 86,6 nm. Dans ce cas, le spectre de transmission de la figure 2.10 présente un pic situé à une longueur d'onde de 470 nm, voisine de celle obtenue avec l'ouverture circulaire de la figure 2.8. La configuration annulaire permet bien d'obtenir des pics à des longueurs d'onde plus importantes pour la même surface d'ouverture.

Dans le but de mieux appréhender le phénomène de transmission à travers les tamis à ouvertures annulaires, nous avons effectué une étude en fonction des différents paramètres géométriques de la structure. Pour cela, nous nous sommes intéressés à une configuration

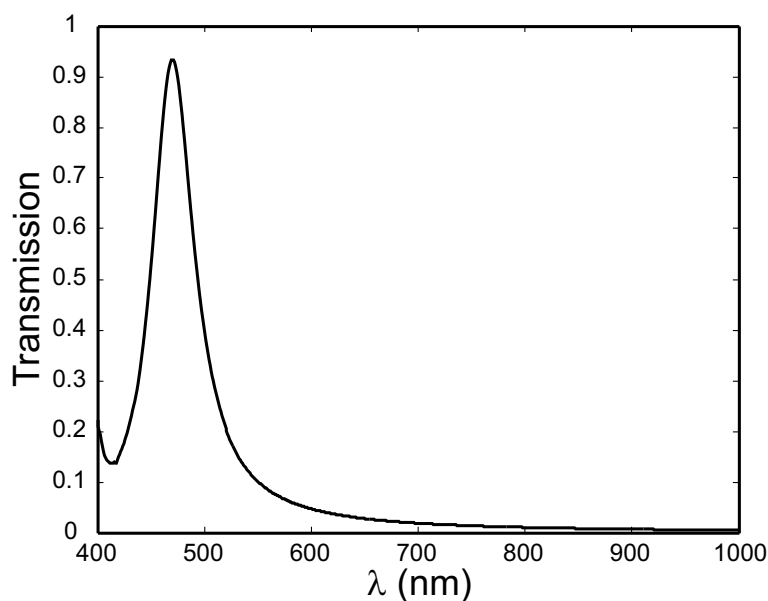


Figure 2.10 – Spectre de transmission d’un réseau d’ouvertures circulaires de diamètre 173,2 nm, de période 350 nm dans une couche d’argent de 100 nm d’épaisseur.

technologiquement réalisable par gravure FIB à la centrale technologique MIMENTO de l’institut FEMTO-ST (surtout en ce qui concerne la valeur des diamètres) et nous avons tenu compte de la présence du substrat de verre.

2.5.2 Influence de la période

La figure 2.11 donne l’évolution du spectre de transmission en fonction de la période de structures annulaires de diamètre intérieur 100 nm et de diamètre extérieur 200 nm gravées dans un film d’argent de 100 nm d’épaisseur déposé sur un substrat de verre ($n=1,5$).

Cette figure montre deux choses essentielles : d’une part, lorsque la période augmente, le pic de transmission semble se mouvoir « moins vite que la valeur de la période » vers les grandes valeurs de longueur d’onde. En effet, plus la période augmente, plus la longueur d’onde de la résonance plasmon est grande elle aussi. On peut suivre ainsi, sur la figure 2.11, l’avancée de cette résonance et son impact sur la transmission. D’autre part, la hauteur du pic diminue mais garde des valeurs assez importantes car elle passe de 95% pour une période de 250 nm à 62% pour une période double de 500 nm. Ces modifications du spectre sont surtout dues à l’apparition de l’excitation du plasmon de surface (de l’inter-

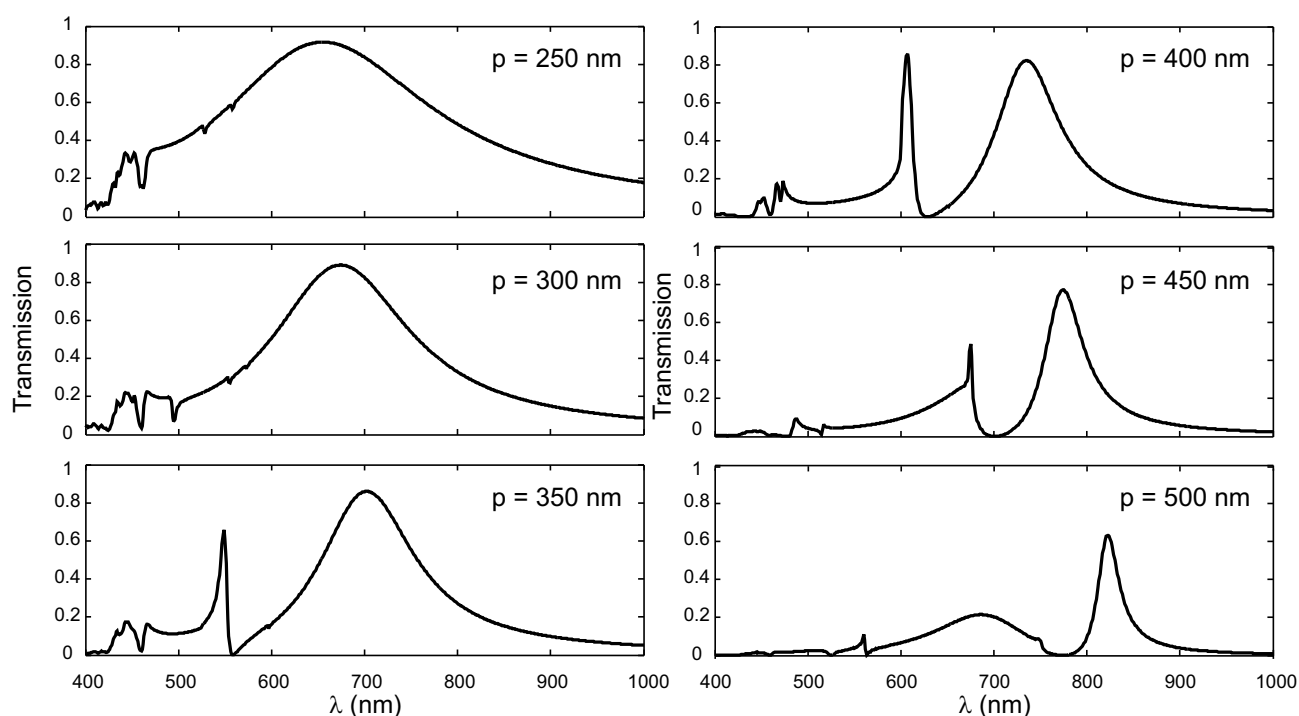


Figure 2.11 – Courbes de transmission en fonction de la période pour des structures annulaires dans une couche d’argent de 100 nm d’épaisseur. Les diamètres intérieur et extérieur sont fixés respectivement à 100 nm et 200 nm.

face argent-verre dans le cas de périodes inférieures à 400 nm et des deux interfaces pour $p = 450$ nm et $p = 500$ nm). L’effet de ce plasmon peut être considéré comme positif si l’on souhaite diminuer la largeur du pic de transmission, ou comme néfaste dans le cas où l’on constate une diminution de la transmission et l’apparition d’un zéro de transmission dans le spectre.

La position du pic de transmission du mode guidé par la cavité ne dépendant que des rayons de l’ouverture coaxiale, les variations de transmission sont donc dues aux conflits entre le mode guidé et la résonance plasmon [99]. Le couplage entre les deux phénomènes peut annuler intégralement la transmission sur une certaine plage spectrale comme il est montré sur la colonne de droite de la figure 2.11.

2.5.3 Influence des diamètres

Cette partie est consacrée à l'étude de l'influence des diamètres sur la transmission à travers les ouvertures annulaires. En effet, dans le cas d'un guide de longueur infinie, la longueur d'onde de coupure du mode TE_{11} dépend uniquement de la valeur des diamètres. Qu'en est-il pour nos guides possédant une longueur bien définie ?

Des spectres de transmission de tamis à photons à ouvertures annulaires avec des diamètres différents sont présentés sur la figure 2.12. La couche métallique en argent d'épaisseur 100 nm est suspendue dans le vide, la période entre chaque ouverture est égale à 400 nm et le diamètre intérieur de l'anneau est fixé à 100 nm. Les spectres sont obtenus pour des diamètres extérieurs de 200, 230, 250 et 300 nm.

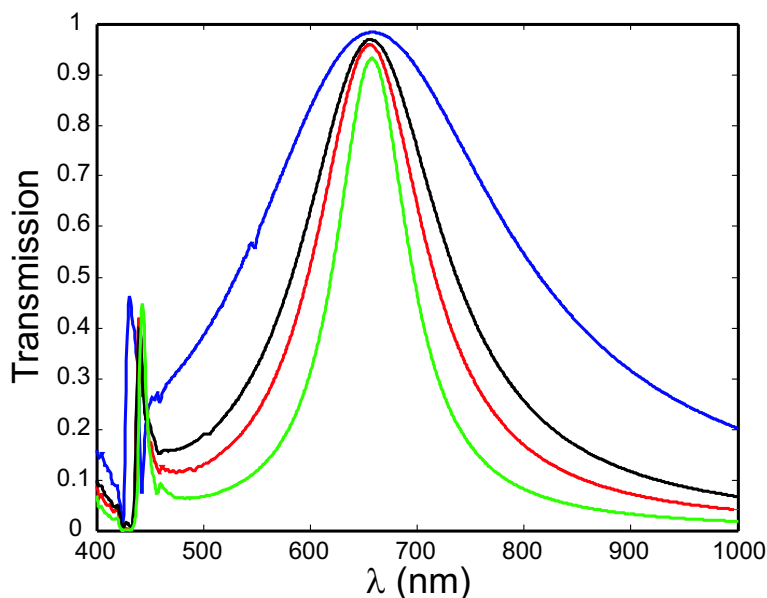


Figure 2.12 – Évolution de la position de la longueur d'onde de coupure en fonction de la variation du diamètre extérieur de la cavité annulaire pour un diamètre intérieur fixé à 100 nm : le diamètre extérieur est égal à 300 nm pour la courbe bleue, 250 nm pour la courbe noire, 230 nm pour la courbe rouge et 200 nm pour la courbe verte.

On remarque que la longueur d'onde du pic de transmission ne semble pas bouger pour ces quatre valeurs. Une étude théorique plus poussée [100] a permis d'affiner les connaissances sur l'influence des diamètres pour la transmission exaltée. Pour une valeur fixée du diamètre intérieur, la variation du diamètre extérieur modifie la longueur d'onde de coupure du mode. Premièrement pour les grandes valeurs de diamètre extérieur, l'évolution de cette longueur d'onde est comparable à celle calculée dans le cadre du métal parfait

avec, néanmoins, un décalage vers le rouge dû à l'absorption du métal. La valeur décroît lorsque l'épaisseur de l'anneau diminue. Tandis que cette décroissance est continue pour le métal parfait jusqu'à atteindre une valeur nulle lorsque les diamètres sont égaux, pour le métal réel la longueur d'onde de coupure passe par un minimum pour augmenter ensuite. Le mode guidé pour de faibles écarts entre les deux diamètres se modifie et se transforme en un mode de résonance plasmon [101, 100]. Il existe de plus en plus d'interactions entre les plasmons situés sur les parois internes de la cavité. Ceux-ci se couplent et favorisent, alors, la transmission sur une plage plus importante de longueur d'onde.

Sur la figure 2.12, nous nous situons autour de la position du minimum de la coupure pour notre géométrie. La longueur d'onde de coupure du mode guidé n'est pas fortement modifiée dans cette zone (figure 3 de la référence [100]). Ceci a un impact technologique important car elle permet d'avoir une marge d'erreur sur la fabrication des structures sans pour autant modifier leur transmission. De plus, le pic devient de plus en plus fin lorsque le diamètre extérieur diminue.

2.5.4 Influence de l'épaisseur de la couche métallique

Dans ce paragraphe, nous nous sommes intéressés à l'influence de l'épaisseur de la couche métallique suspendue dans le vide. Pour cela, tous les paramètres géométriques des ouvertures restent constants, seule l'épaisseur varie entre 100 et 900 nm par pas de 200 nm (figure 2.13). Les diamètres intérieur et extérieur, ainsi que la période sont fixés respectivement à 200 nm, 100 nm et 350 nm.

Sur la figure 2.13, la longueur d'onde de coupure du guide infini λ_c possédant les mêmes diamètres que nos ouvertures est indiquée par une ligne en pointillé et se situe à la longueur d'onde $\lambda_c = 660$ nm. Cette longueur d'onde est calculée à partir d'un code basé sur un algorithme FDTD en coordonnées cylindriques développé dans notre équipe. On remarque que cette longueur d'onde de coupure correspond également à celle de nos structures d'épaisseur finie.

Lorsque l'épaisseur de la couche augmente, le nombre de pics de transmission augmente également. La couche métallique nanostructurée se comporte alors comme une cavité Fabry-Pérot, cavité formée par les faces de sortie et d'entrée de l'ouverture. Tous les pics sont des harmoniques du mode fondamental situé à la longueur d'onde de coupure. La

figure 2.14 donne une coupe transverse de l'intensité du champ dans la cavité pour les pics de transmission obtenus avec une épaisseur de la couche de 500 nm. Le mode fondamental, pic α , se situe à 660 nm comme nous l'avons déjà écrit et les harmoniques, pics β , γ et δ , respectivement à 620, 525 et 440 nm.

2.5.5 Influence du substrat

Les résultats présentés sont tous obtenus pour des couches métalliques suspendues dans le vide. Technologiquement, cela est très difficile à réaliser, en particulier pour maintenir l'âme de l'anneau. Nous devons donc savoir quelle peut être l'influence d'un substrat sur la transmission. Nous montrons, sur la figure 2.15, les premiers résultats en simulation obtenus.

Il est évident que le substrat influence la transmission. La position de la longueur d'onde de transmission est décalée vers des longueurs d'onde plus grandes. Comme dans le cas de l'influence de la période, ceci est dû à un couplage entre le mode guidé et la résonance plasmon. La résonance plasmon dépend, comme nous l'avons déjà écrit, de la période de la structure mais également de la nature du substrat par l'intermédiaire de ses propriétés diélectriques. Le couplage de la résonance plasmon avec le mode guidé par la cavité modifie profondément la transmission. D'autres travaux doivent être effectués pour améliorer les connaissances sur ce couplage et, ainsi, sur la transmission.

2.5.6 Influence de la polarisation du faisceau incident

La transmission de la lumière à travers une ouverture annulaire est théoriquement insensible à la polarisation du faisceau incident et ceci à cause de sa symétrie de révolution. La figure 2.16 confirme cette affirmation pour des structures ayant des géométries identiques à celles utilisées dans la partie concernant l'influence de l'épaisseur. Dans ces simulations, on a tenu compte d'un substrat de verre, cela en vue de manipulations expérimentales.

Pour les trois angles de polarisation choisis, les courbes sont identiques. L'angle de polarisation est donné par rapport à l'axe x défini sur la figure 1.7 à la page 23. La polarisation linéaire d'un faisceau incident n'a aucune influence sur la transmission à

travers les couches métalliques nanostructurées. Une étude expérimentale de l'influence de ce paramètre est explicitée dans le chapitre suivant de ce manuscrit. Les résultats montrent que l'influence est inexistante uniquement si la structure est bien symétrique, donc si elle ne présente aucun défaut de fabrication.

La structure peut être, cependant, rendue sensible à la polarisation en séparant en deux l'anneau ce qui brise sa symétrie (figure 2.17). Un travail a montré la sensibilité à la polarisation de ce type de structure [102]. Celle présentée sur la figure 2.17 va être sensible à une polarisation selon la direction x . Comme le montre la figure 2.18, il est important de noter que la transmission reste identique à celle de l'anneau entier.

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons explicité la méthode numérique utilisée au cours de cette thèse :

- la cellule de Yee pour le calcul des coordonnées spatiales et temporelle des champs électrique et magnétique qui forment l'onde électromagnétique,
- le maillage adaptatif pour avoir une meilleure approche du comportement autour de nos structures et pour diminuer le temps de calcul,
- la méthode de Bérenger pour éviter les ondes réfléchies sur la fenêtre de calcul qui interféreraient avec les ondes incidentes et transmises,
- et les modèles utilisés pour tenir compte du comportement des métaux.

Pour l'argent, un simple modèle de Drude suffit puisque l'onde électromagnétique est très peu absorbée par celui-ci. Par contre, pour l'or, un modèle de Drude-Lorentz a été développé pour tenir compte de sa forte absorption dans le domaine des longueurs d'onde visibles de la lumière. Ce modèle fait appel à la méthode dite des accumulateurs récursifs. Insistons fortement sur le fait que l'algorithme de Yee est excessivement robuste et stable d'un point de vue numérique car il permet la résolution des deux champs électrique et magnétique simultanément, ce que n'assure pas la résolution de l'équation de propagation de l'onde dans laquelle n'apparaît qu'un seul des deux champs.

Enfin, nous avons décrit l'influence des différents paramètres sur le mode guidé de cavité. La période et la nature du substrat modifient les pics de transmission par l'apparition d'un couplage avec la résonance plasmon. Les diamètres influent directement sur la position de la longueur d'onde de coupure du pic de transmission. L'épaisseur de la couche, quant à

elle, provoque l'apparition des modes harmoniques du mode fondamental de la cavité. De part sa symétrie circulaire, la cavité annulaire n'est pas sensible à la polarisation.

Soulignons la robustesse de cette géométrie car, comme il a été démontré [103], elle est insensible à la polarisation du faisceau incident mais également à l'angle d'incidence. Les courbes de transmission ne sont pratiquement pas modifiées, ce qui peut laisser une certaine marge d'erreur lors d'une étude expérimentale.

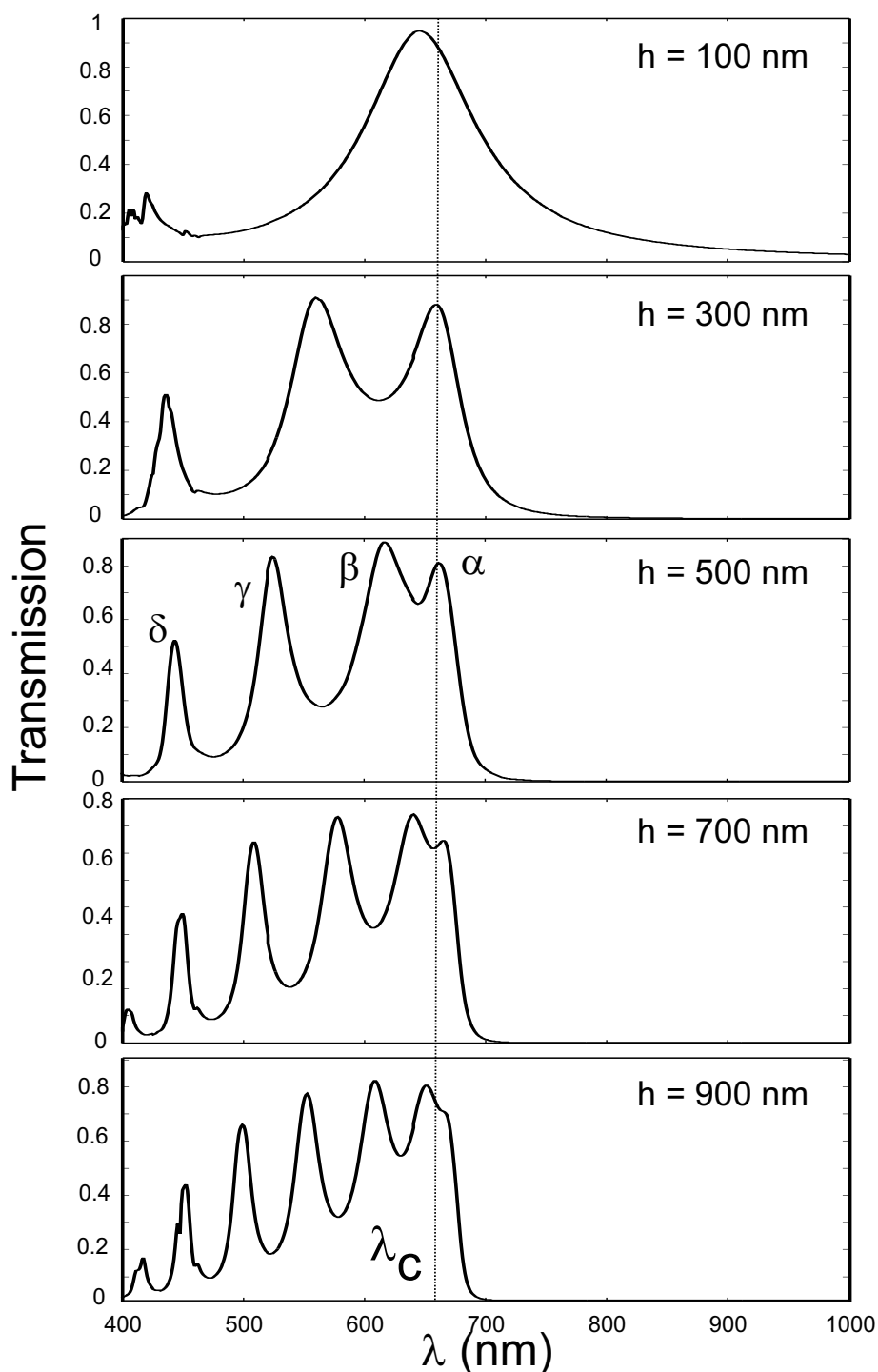


Figure 2.13 – Évolution de la transmission à travers des films d’argent nanostructurés par des ouvertures annulaires de diamètre intérieur 100 nm, de diamètre extérieur 200 nm et de période 350 nm en fonction de l’épaisseur de la couche métallique. Les pointillés indiquent la position de la longueur d’onde de coupure du mode TE_{11} du guide coaxial infini avec les mêmes dimensions.

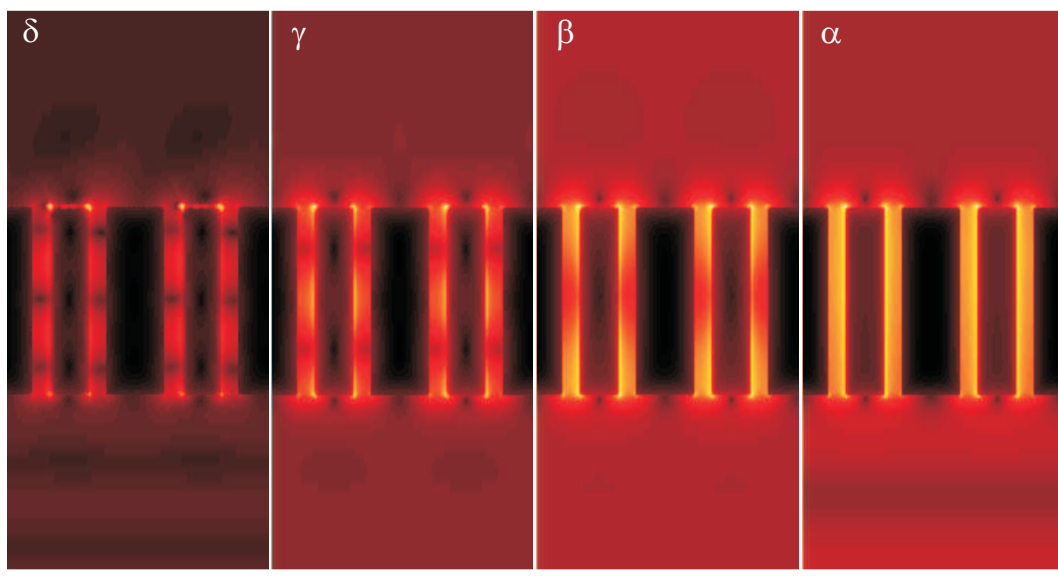


Figure 2.14 – Coupe transverse de l'intensité du champ dans la cavité étudiée pour les longueurs d'onde : δ à 440 nm, γ à 525 nm, β à 620 nm et α à 660 nm. Les échelles pour chaque coupe sont logarithmiques.

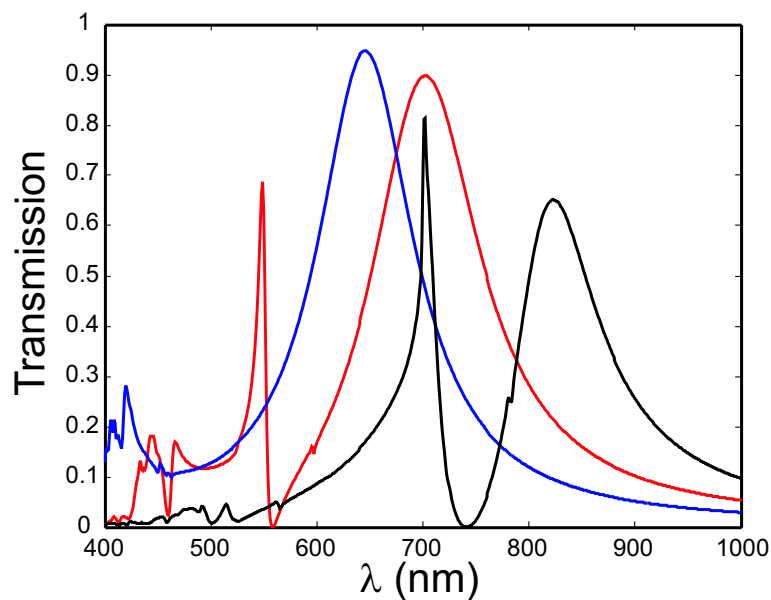


Figure 2.15 – Évolution de la transmission à travers des films d'argent d'épaisseur 100 nm nanostructurés par des ouvertures annulaires de diamètre intérieur 100 nm, de diamètre extérieur 200 nm et de période 350 nm pour différents substrats d'indice optique : 1 pour la courbe bleue, 1,5 pour la courbe rouge et 2 pour la courbe noire.

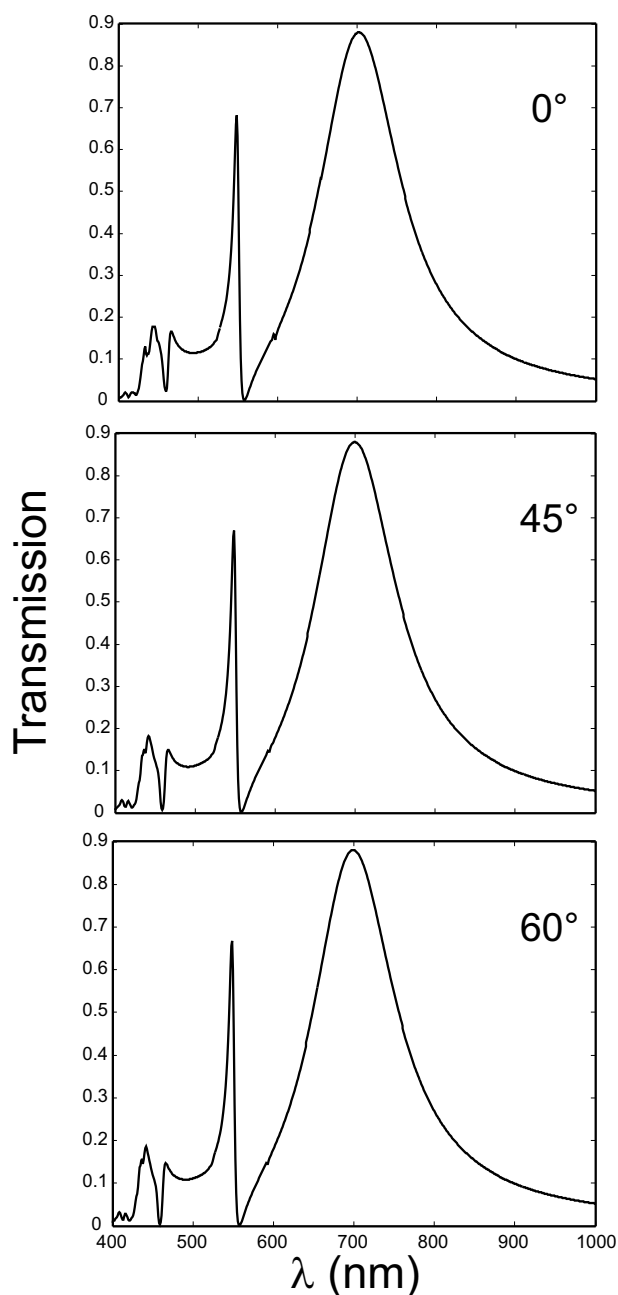


Figure 2.16 – Évolution de la transmission à travers des films d'argent d'épaisseur 100 nm nanostructurés par des ouvertures annulaires de diamètre intérieur 100 nm, de diamètre extérieur 200 nm et de période 350 nm avec un substrat de verre pour différentes polarisations incidentes linéaires : 0° , 45° et 60° par rapport à l'axe x défini sur la figure 1.7 à la page 23.

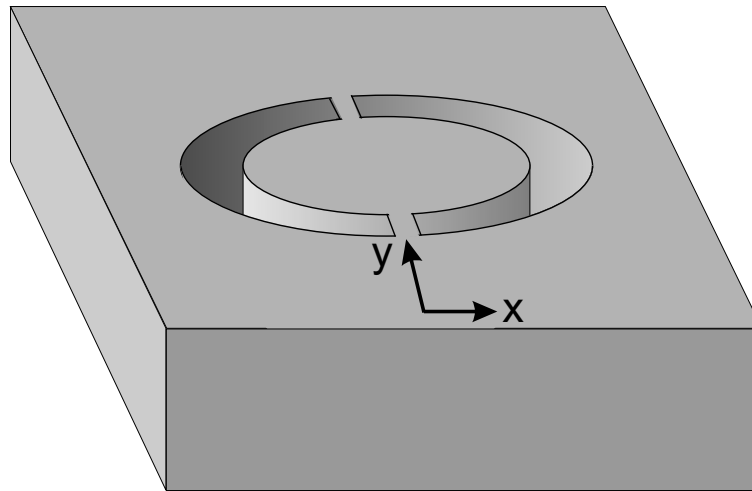


Figure 2.17 – Schéma de la structure en demi-anneau pour l'influence de la polarisation.

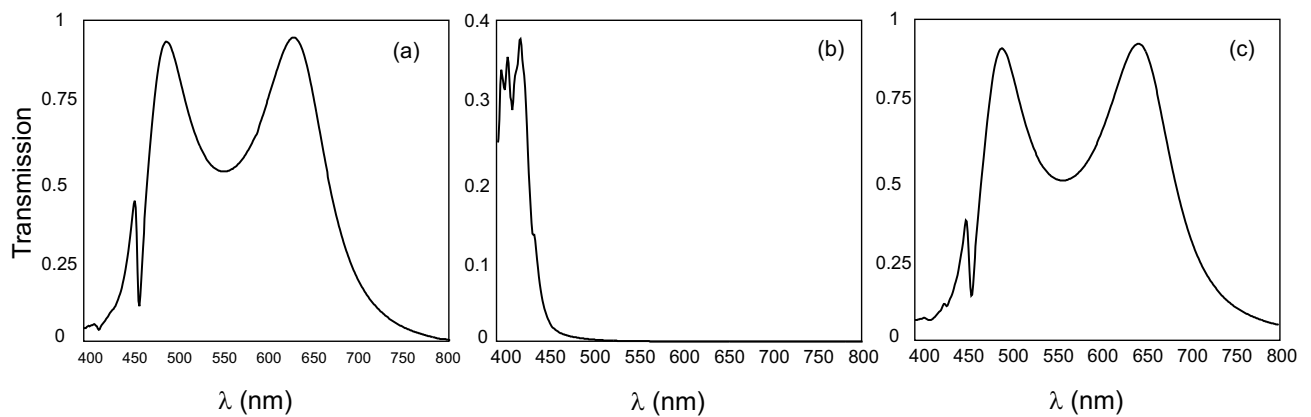


Figure 2.18 – Transmission de la lumière à travers des réseaux d'ouverture (a) : semi-annulaire avec un faisceau polarisé suivant x , (b) : semi-annulaire avec un faisceau polarisé suivant y et (c) : annulaire.

Chapitre 3

Résultats expérimentaux

3.1 Introduction

Dans son livre *L'Univers élégant* [104], Greene écrit : « les théories ne sont jugées que par la façon dont elles résistent aux dures et froides réalités expérimentales ». Même si l'emploi des adjectifs *dures* et *froides* peut paraître légèrement exagéré pour décrire une expérience physique, l'idée de validation expérimentale de toutes les théories nous apparaît comme une évidence. Le but de ce chapitre est de décrire toutes les expériences menées au cours de ce travail de thèse pour valider notre explication, basée sur les modes de cavité, de la forte transmission lumineuse obtenue à travers des structures annulaires creusées dans un film métallique opaque. Dans un premier temps, nous décrivons les étapes de fabrication de nos structures. Deux types de fabrications ont été employés : celle par lithographie électronique et celle par faisceau ionique. Ensuite, nous décrivons l'expérience qui a permis la mise en évidence de l'existence du mode TE_{11} dans les cavités. Enfin, nous présentons l'expérience avec laquelle la forte transmission de la lumière à travers ces structures annulaires a été obtenue. Une transmittance de 90% a été mesurée dans le domaine visible de la lumière ce qui, à notre connaissance, est la valeur la plus importante jamais atteinte pour ces longueurs d'onde. Dans la partie validant le mode guidé, les échantillons testés sont en or ; dans les mesures de spectres, les échantillons sont en argent pour avoir une meilleure transmittance. Une collaboration fructueuse avec l'équipe de l'École Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL) a été mise en place pour la réalisation de plusieurs structures étudiées dans ce chapitre.

3.2 Fabrication des structures

Les premières manipulations réalisées l'ont été pour la fabrication de ces structures sub-longueur d'onde. Les procédés de technologies dépendent fortement de la qualité des matériels et des outils mis à notre disposition. Ceux-ci sont, souvent, coûteux en temps et en patience. De la bonne fabrication des objets nanométriques dépendra l'obtention de bons résultats. Dans cette partie, nous décrivons les process de salle blanche utilisés pour arriver à l'obtention des matrices d'ouvertures annulaires. Deux approches ont été proposées pour arriver à l'obtention des structures métalliques : le procédé par lithographie électronique et le procédé par gravure directe par faisceau d'ions (Focused Ion Beam, FIB).

3.2.1 Préparation de la couche métallique

Dans un premier temps, nous allons décrire les méthodes de préparation du substrat, puis les méthodes pour déposer les couches métalliques sur celui-ci. Tous les substrats utilisés au cours ce travail de salle blanche sont en oxyde de silicium (SiO_2), ce sont des lamelles de recouvrement ou lames porte-échantillon pour les microscopes optiques. Les premières étant très fines (de l'ordre de $125 \mu\text{m}$ d'épaisseur), elles sont extrêmement fragiles. Dans la mesure du possible, nous avons privilégié l'utilisation de lames porte-objet comme substrat.

Nettoyage du substrat

La première étape est le nettoyage du substrat de façon à éliminer toutes traces de produits polluant sa surface. Ces polluants peuvent altérer la pureté de la couche métallique. En effet, celle-ci est très fine : environ quelques centaines de nanomètres d'épaisseur. La moindre poussière, éclats de verre suite à la découpe des lamelles ou autres produits organiques, qui peuvent aisément avoir cette taille, rendent la couche de métal non uniforme. Ceci est primordial pour la qualité de nos structures de dimension sub-longueur d'onde, surtout pour les couches d'accroche.

Le procédé de nettoyage se fait en trois étapes :

1. le substrat est passé dans un bain à ultrasons pour éliminer les gros éléments présents comme les poussières ou éclats de verre ;
-

2. ensuite, il est passé dans un bain d'acide sulfochromique, un mélange d'acide sulfurique et de sels de chrome, pour éliminer toute trace de corps organiques ;
3. enfin, il est nettoyé dans des bains d'eau : de façon grossière, d'abord, pour éliminer les traces d'acide sulfochromique ; ensuite, dans un bain d'eau très pure dont on contrôle la résistivité ($15 \text{ M}\Omega$) pour assurer le meilleur nettoyage possible. Tant que la résistivité de l'eau n'atteint pas la valeur $15 \text{ M}\Omega$, il reste des impuretés.

Dépôt de la couche métallique

Le dépôt des couches d'or ou d'argent peut se faire en employant deux méthodes, par pulvérisation ou par évaporation, méthodes que nous allons décrire dans cette partie.

Le principe de la méthode par pulvérisation consiste à bombarder une cible, constituée par le métal à déposer, par des ions à hautes énergies afin d'arracher des atomes de sa surface et de les déposer sur le substrat. Dans une enceinte à vide, la cible de métal est placée sur la cathode de l'appareil tandis que le substrat est déposé sur l'anode. On réalise, alors, un vide poussé (10^{-6} à 10^{-7} millibar) dans cette enceinte afin d'éliminer toutes particules pouvant empêcher le bon déroulement du dépôt. Un gaz inerte (argon ou néon) est ensuite introduit dans l'enceinte à faible pression (10^{-3} millibar). Ce gaz est ionisé à l'aide d'un fort champ électrique continu entre l'anode et la cathode. Le gaz est transformé en plasma. Les ions lourds formés sont accélérés par ce champ et viennent heurter la cible métallique. Par transfert de quantité de mouvement, les atomes de surface de la cible sont éjectés. Ils se condensent, pour finir, sous forme de couche mince sur le substrat.

L'avantage de cette méthode est qu'elle permet de déposer tous types de matériaux sur n'importe quelle surface. De plus, elle est isotrope c'est-à-dire qu'elle n'est pas directionnelle. L'épaisseur de métal déposée est constante sur la surface du substrat. Les inconvénients sont une relative lenteur dans le dépôt (moins de 200 nm de dépôt par minute) et, souvent, l'apparition de gros amalgames métalliques arrachés à la cible.

Le principe de la méthode par évaporation repose sur la condensation d'un métal sous forme vapeur sur la surface du substrat. Le substrat est déposé dans une enceinte sous vide. Avec cette méthode, on réalise également un vide poussé pour éliminer toutes particules étrangères au process. Le métal à déposer est chauffé à l'aide d'un bombardement par un faisceau d'électrons. À cause de la faible pression et de l'énergie thermique reçue, le métal

est sublimé. Le gaz se meut librement dans l'enceinte. Il se dépose, enfin, par condensation sur le substrat.

L'avantage de cette méthode est qu'elle est très rapide (de l'ordre de $1\ \mu\text{m}$ de dépôt par minute). Le gros inconvénient réside dans le contrôle de la direction de dépôt. La rotation du substrat pendant le dépôt rend la couche métallique d'épaisseur constante.

La méthode la plus souvent employée pour la réalisation des structures a été la méthode par évaporation avec un appareil de chez Alliance Concept. De nombreux échantillons testés ont été réalisés avec la méthode de pulvérisation avec un appareil Pulvé Plassys. Notre choix s'est cependant porté sur l'évaporation car les couches réalisées sont beaucoup plus homogènes pour nos expériences.

Il est à noter que la phase de métallisation n'arrive pas au même instant dans les deux procédés de fabrication utilisés : en cours de processus pour la lithographie électronique, au début pour la gravure ionique.

Une remarque importante : les expériences menées l'ont toujours été avec des couches d'or ou d'argent. Ces deux métaux ont besoin d'une couche d'accroche pour se maintenir sur le substrat de verre. La couche d'accroche est généralement une fine couche (5 nm) de chrome ou de titane.

3.2.2 Fabrication par lithographie électronique

Le Microscope Électronique à Balayage (MEB) est un outil puissant pour visualiser rapidement la forme, la qualité ou la disposition de nano-structures métalliques. La résolution de cet appareil est de l'ordre de quelques nanomètres. De plus, le faisceau électronique peut également servir à insoler des résines sensibles aux électrons, la plus connue et utilisée étant la résine PolyMéthylMéthAcrylate (PMMA). C'est le principe de la lithographie électronique. Le processus technologique décrit, ici, est celui développé à l'EPFL par Perentes *et al.* dans l'équipe de Patrik HOFFMANN lors de notre collaboration [105].

Dans une première étape, on dépose la résine sur le substrat de verre par la méthode de « spin-coating » (étape (a) de la figure 3.1). Ce substrat est recouvert d'une fine couche d'oxyde conducteur transparent afin de permettre l'évacuation des charges lors de la gravure. La résine se répartit sur le substrat par un effet de centrifugation. La hauteur de

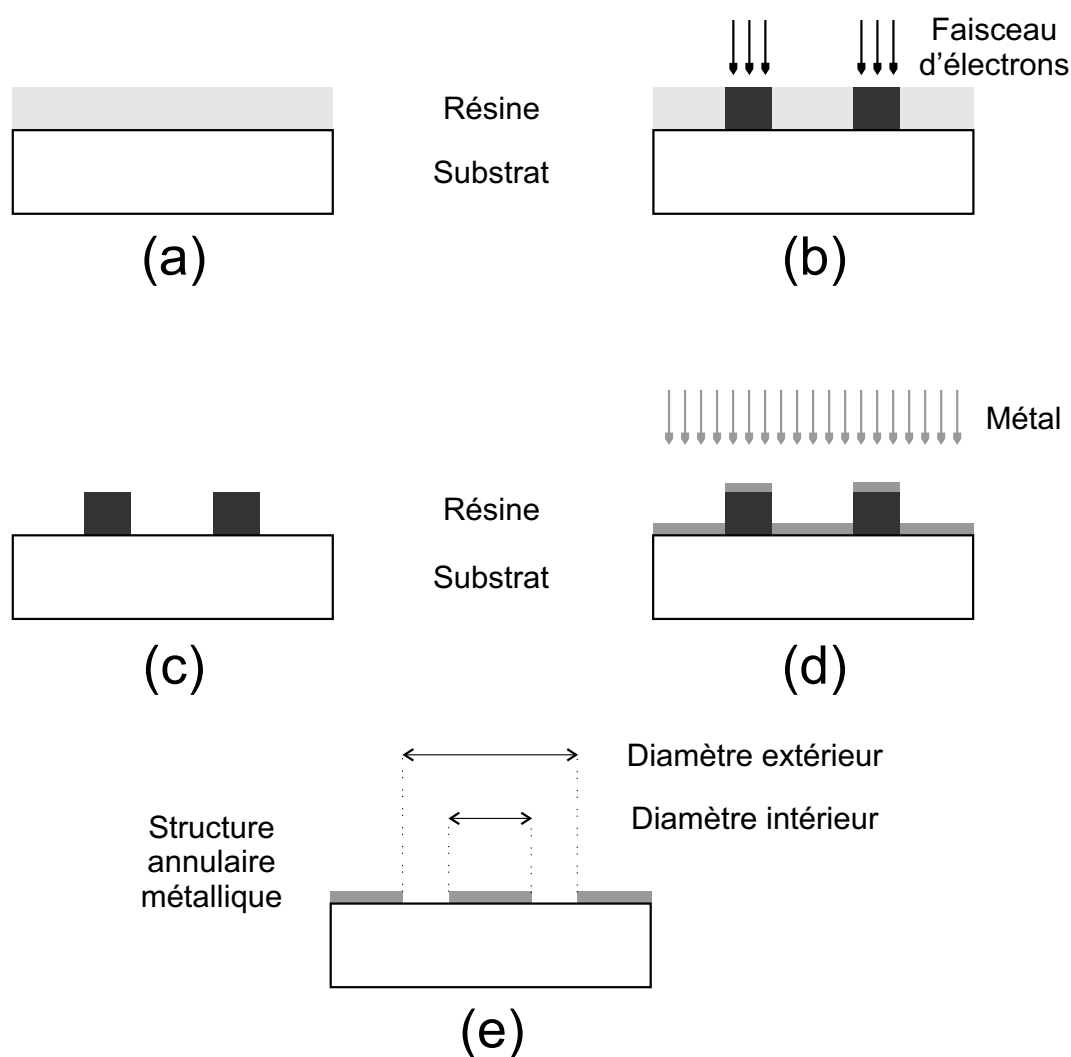


Figure 3.1 – Étapes de fabrication de structures annulaires par gravure électronique. (a) : dépôt de résine négative; (b) : transfert du motif de la structure dans la résine par faisceau électronique; (c) : développement de la résine non insolée; (d) : dépôt de la couche métallique et (e) : dissolution de la résine restante dans un bain d'acétone.

résine que l'on souhaite appliquer dépend de la vitesse, de l'accélération et du temps de rotation de la tournette, mais également de la viscosité de la résine employée. La résine employée est une résine commerciale ma-N 2410 développé par Micro Resist Technology. C'est une résine dite négative, c'est-à-dire que la zone insolée par le faisceau électronique reste après son développement, contrairement au PMMA qui est une résine dite positive. L'épaisseur de résine déposée est de 700 nm. L'utilisation de cette résine permet d'obtenir un bon facteur de forme et une bonne résolution [106].

La deuxième étape consiste à transférer le motif dans la résine (étape (b) de la figure 3.1). La gravure est réalisée par un microscope JSM-6400 de la marque JEOL. Le faisceau est produit par une source en hexaborure de lanthane (LaB_6). Les réglages d'alignement de faisceau, ainsi que les corrections des aberrations et de l'astigmatisme sont effectués avant la phase de gravure. Le motif est créé grâce au logiciel Naby Systems Patterning Software (NPGS). Celui-ci permet aussi le contrôle du faisceau lors de la gravure. Différents paramètres sont à prendre en compte pour optimiser la gravure :

- les courants du faisceau électronique et de gravure ;
- le pas entre chaque pixel (stepsize) ;
- le temps d'exposition de la résine au faisceau (dwelltime) ;
- le temps entre chaque spot électronique (settlingtime).

Mais le paramètre le plus important est la dose électronique. Celle-ci représente physiquement la sensibilité de la résine aux électrons. Cette dose, pour la résine employée, varie entre 200 et 250 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$. Des tests ont montrés que, pour nos dimensions, les meilleures structures étaient obtenues avec une dose de 250 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$.

La zone exposée au faisceau électronique change de composition chimique. Elle devient alors inerte au développeur. La partie non insolée est nettoyée par le développeur adapté, dans notre cas le MF319 de la marque Shipley (étape (c) de la figure 3.1).

Ensuite, la couche de métal est déposée par une des deux méthodes exposées précédemment (étape (d) de la figure 3.1).

Enfin, un bain à ultrason d'acétone permet d'éliminer les zones de résines insolées restantes et de libérer les nano-structures métalliques (étape (e) de la figure 3.1). L'image 3.2 donne un aperçu de la qualité des objets réalisés dans une couche d'or de 150 nm d'épaisseur. Les paramètres géométriques sont 250 nm/330 nm respectivement pour le diamètre intérieur/diamètre extérieur et de 600 nm pour la période.

L'inconvénient de la lithographie électronique est le nombre des étapes. Plus le processus demande d'étapes de travail, plus on augmente les erreurs de fabrication. De plus, la qualité de la résine est primordiale pour l'obtention de cavités avec un bon facteur de forme et une bonne résolution. Par contre, les avantages sont nombreux : la méthode donne une très bonne résolution (de l'ordre du nanomètre) et la phase de gravure électronique est rapide. On peut ainsi obtenir des structures sur des surfaces assez importantes

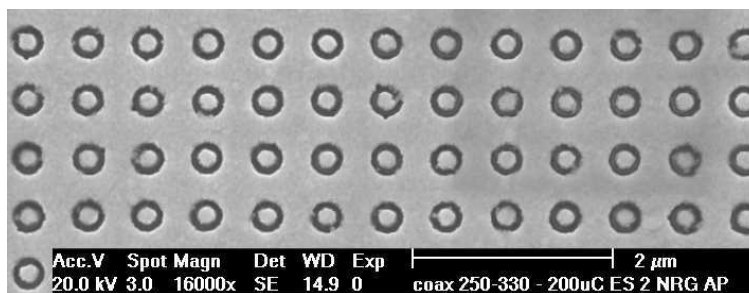


Figure 3.2 – Image prise au microscope électronique à balayage de structures annulaires réalisées par lithographie électronique avec les paramètres suivants : diamètre intérieur de 250 nm, diamètre extérieur de 330 nm, période de 600 nm et épaisseur de 150 nm, image réalisée à l’EPFL.

(de quelques mm^2).

3.2.3 Gravure par faisceau ionique

La gravure par faisceau ionique ou *Focused Ion Beam* (FIB) est une méthode adéquate pour la réalisation de nano-structures. Son principe est très simple : un faisceau d’ions gallium (Ga^+) est envoyé directement sur la couche métallique, obtenue à l’aide d’une des deux méthodes exposées précédemment, et creuse la structure en éjectant par actions mécaniques les atomes de la couche. Les ions Ga^+ ne polluent pas la couche métallique. Les propriétés optiques de celle-ci restent donc inchangées. Des structures réalisées à l’EPFL, avec un NOVA 600 de FEI, et à la centrale de technologie MIMENTO de l’institut FEMTO-ST, avec une colonne Canion 31 de Orsay Physics, sont présentées sur les images 3.3, 3.4 et 3.5. Le tableau 3.1 résume les paramètres importants utilisés pour la gravure dans les deux centrales technologiques.

Tableau 3.1 – Tableau des paramètres utilisés pour la gravure des structures annulaires à l’aide de la gravure ionique entre les deux centrales de technologies.

	EPFL	MIMENTO
Tension de la source	30 keV	30 keV
Courant du faisceau	12 pA	25 pA
Diamètre du faisceau	12 nm	40 nm

La gravure ionique est très lente du fait du principe mécanique d’éjection des atomes.

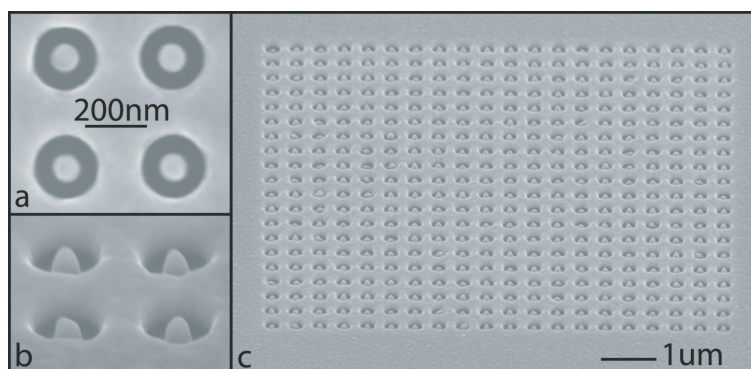


Figure 3.3 – Images prises au microscope électronique de structures annulaires réalisées à l’EPFL par gravure ionique avec les paramètres suivants : diamètre intérieur de 100 nm, diamètre extérieur de 200 nm, période de 350 nm et épaisseur de 100 nm. (a) : vue de quatre structures, (b) : vue avec un angle de 52° et (c) : vue de la matrice complète.

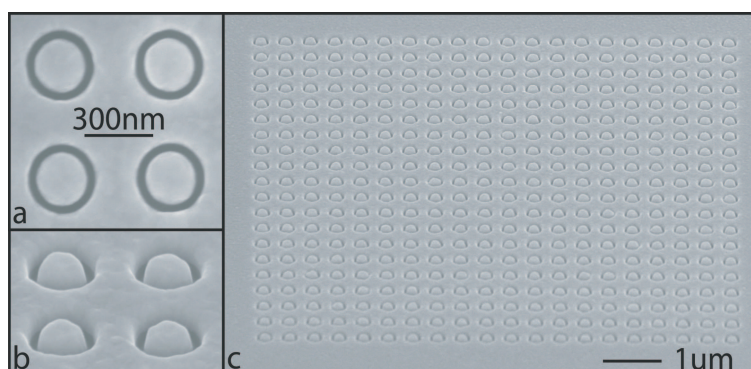


Figure 3.4 – Images prises au microscope électronique de structures annulaires réalisées à l’EPFL par gravure ionique avec les paramètres suivants : diamètre intérieur de 230 nm, diamètre extérieur de 330 nm, période de 500 nm et épaisseur de 100 nm. (a) : vue de quatre structures, (b) : vue avec un angle de 52° et (c) : vue de la matrice complète.

Les structures obtenues ne dépassent guère quelques μm^2 . Par contre, la gravure est directe sur une couche métallique. On ne multiplie pas les étapes de préparation. Les avantages et les inconvénients sont résumés dans le tableau 3.2.

Tableau 3.2 – Comparaison entre les deux types de gravure.

	Gravure électronique	Gravure ionique
Inconvénient	Nombreuses étapes pour le processus	Petite surface de gravure
Avantage	Grande surface de gravure	Gravure directe dans la couche

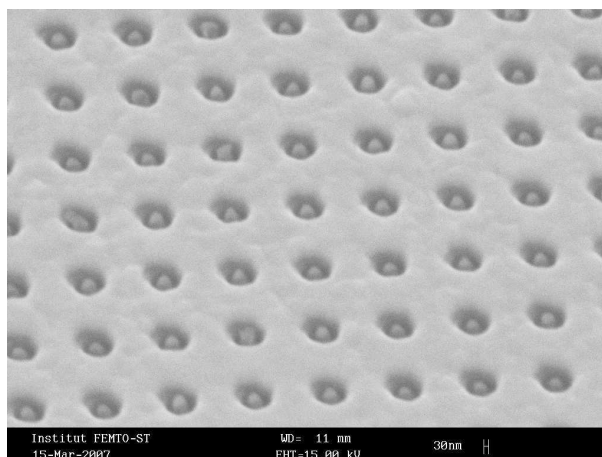


Figure 3.5 – Image prise avec un angle de 40° au microscope électronique de structures annulaires réalisées à la centrale de technologie MIMENTO par gravure ionique avec les paramètres suivants : diamètre intérieur de 100 nm, diamètre extérieur de 200 nm, période de 500 nm et épaisseur de 100 nm.

La caractérisation des échantillons peut également se faire à l'aide d'un microscope à force atomique ou *Atomic Force Microscope* (AFM) comme le montre la figure 3.6.

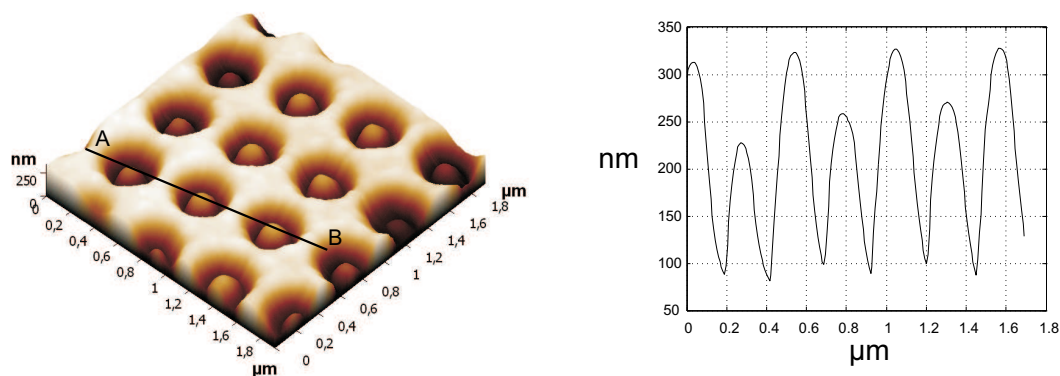


Figure 3.6 – Caractérisation AFM de matrices d'ouvertures annulaires.

Sur cette figure, nous obtenons la topographie de trois périodes de structures annulaires avec la coupe entre le point A et le point B.

3.2.4 Approche qualitative

Les échantillons réalisés, par l'une ou l'autre technique de gravure, ont été imagés avec un microscope optique classique (Reichert-Jung) avec un grossissement de 50. Les

structures sont illuminées en transmission par une source thermique. La figure 3.7 donne l'image en couleur réelle des matrices.

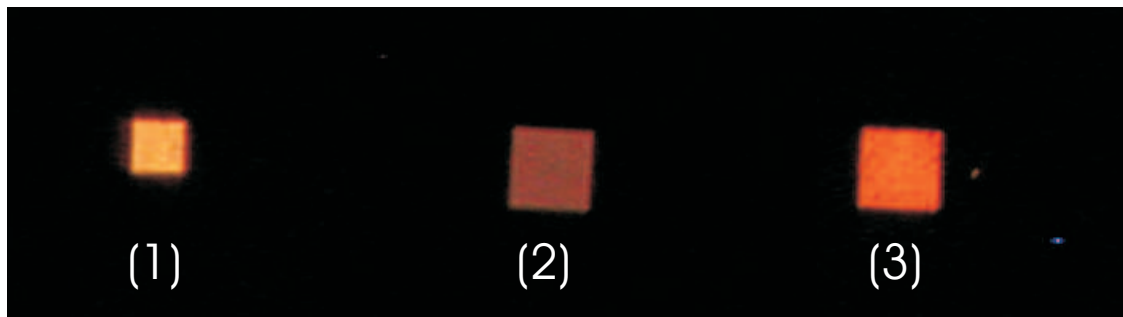


Figure 3.7 – Images des trois structures annulaires obtenues au microscope optique classique fonctionnant en transmission avec un grossissement de 50. La couche d'argent est de 100 nm d'épaisseur et les dimensions sont respectivement diamètre intérieur, diamètre extérieur, période pour la matrice 1 : 100 nm, 200 nm, 350 nm, pour la matrice 2 : 230 nm, 330 nm, 500 nm et pour la matrice 3 : 100 nm, 200 nm, 500 nm.

Les dimensions de ces structures, toutes réalisées dans une couche d'argent de 100 nm d'épaisseur, sont regroupées dans le tableau 3.4 :

Tableau 3.3 – Tableau des dimensions des structures imagées sur la figure 3.7. L'épaisseur de la couche d'argent est de 100 nm.

	Structure 1	Structure 2	Structure 3
Diamètre intérieur	100 nm	230 nm	100 nm
Diamètre extérieur	200 nm	330 nm	200 nm
Période	350 nm	500 nm	500 nm

Comme nous pouvons le constater sur la figure 3.7, la lumière transmise par la matrice 1 se situe dans le jaune, celle de la matrice 2 dans le violet et celle de la matrice 3 dans l'orange. Pour chaque matrice, une courbe de transmission théorique a été calculée à l'aide du code FDTD décrit dans le chapitre précédent. Les courbes théoriques sont données sur la figure 3.8.

Les courbes théoriques et les images enregistrées montrent une bonne concordance. Pour la matrice 1, les pics de transmission importante apparaissent autour des longueurs d'onde de 550 nm, dans le vert, et de 700 nm, dans le rouge. Lorsque ces deux couleurs sont mélangées, on obtient effectivement une teinte jaune. Le même raisonnement peut

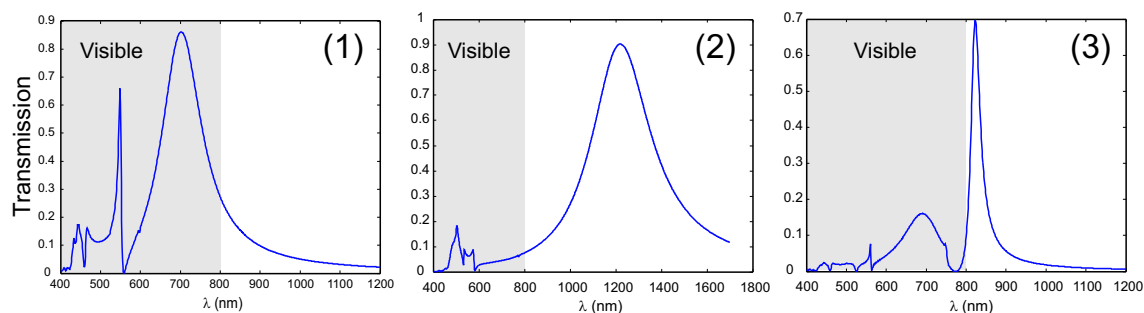


Figure 3.8 – Courbes théoriques des structures de la figure 3.7. Chaque numéro de courbe correspond à celui de l’image.

s’appliquer aux deux autres courbes. Pour la matrice 2, toutes les longueurs d’onde du visible sont transmises mais avec de faibles valeurs dans le domaine visible. La plus forte transmission se situe dans le violet, ce qui explique le teinte prise par la matrice 2. Enfin, la matrice 3 présente une transmission dans le visible entre 600 et 750 nm, d’où sa teinte orange.

Ces observations sont qualitatives. Elles donnent déjà un très bon aperçu des qualités de filtrage de ces structures. L’obtention des spectres de transmission reste l’objectif de cette thèse. Celle-ci sera réalisée dans la partie concernant la mesure des spectres de transmission.

3.3 Caractérisation en microscopie optique en champ proche en mode réflexion

Le mode guidé TE_{11} , apparaissant dans la cavité annulaire, est à l’origine de la forte transmission lumineuse. Un outil puissant pour déterminer la forme spatiale de ce mode est la microscopie optique en champ proche. En effet, cette microscopie permet de connaître les champs électromagnétiques se situant vraiment à proximité de la surface des échantillons. Lors de la propagation, à cause de la diffraction, les champs se déforment et se superposent. On perd, par conséquent, la forme spatiale du champ à proximité de la cavité. La microscopie champ proche optique va nous permettre de valider la forme de ce champ. Après une présentation des grands principes de la microscopie champ proche optique, nous donnerons les résultats expérimentaux obtenus sur deux matrices avec des géométries différentes en utilisant le microscope en mode réflexion. Des expériences simi-

lares réalisées par une équipe australienne sont venues confirmer les résultats présentés dans cette partie [107].

3.3.1 Rappels sur la microscopie champ proche

La connaissance des structures de plus en plus petites passe par l'utilisation d'instruments formidables que l'on nomme des microscopes. Il en existe plusieurs familles : optique, électronique, à force atomique... Depuis leur invention par le hollandais Van Leuwenhoek au XVI^{ième} siècle, les microscopes optiques ont fait beaucoup de progrès. Leur principe de fonctionnement repose sur le fait de capter la lumière ré-émise par les structures après leur illumination comme sur la figure 3.9.

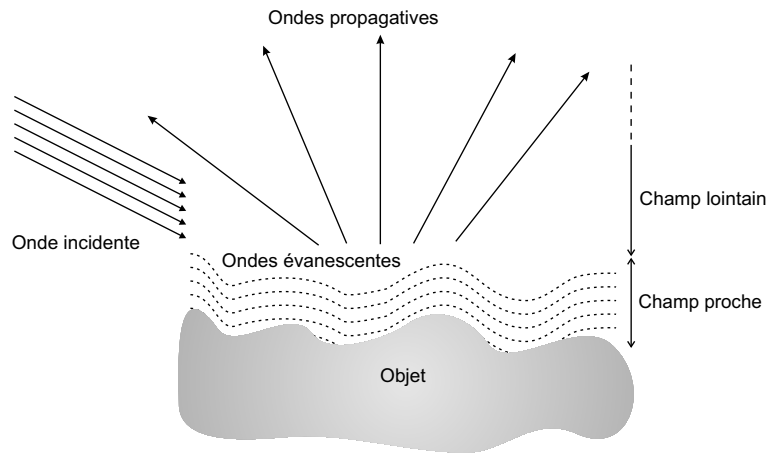


Figure 3.9 – Diffraction de la lumière en ondes propagatives et évanescentes par un objet éclairé en réflexion.

Par contre, une limite de résolution apparaît empêchant leur utilisation pour affiner la résolution de l'image : le critère de Rayleigh-Abbe. En effet, ce critère donne la limite de résolution notée généralement d que l'on peut attendre avec ce type de microscopes possédant une lentille circulaire :

$$d = \frac{0,61\lambda}{n \sin(\theta)} \quad (3.1)$$

où λ est la longueur d'onde de la lumière qui sert à illuminer la structure, θ l'angle d'ouverture maximal et n l'indice du milieu. Pour obtenir une meilleure résolution, qui se traduit par une diminution de la valeur de d , il faut capter les hautes fréquences spatiales,

idée ancienne proposée par Synge en 1928 [108] mais tardivement mise en place dans les années 80 [109] pour des raisons technologiques. Ces hautes fréquences spatiales portent les informations concernant les plus petits détails de la structure. Or, elles ne se propagent pas mais restent confinées au voisinage immédiat de la surface de l'échantillon sous forme de champ évanescent comme indiqué sur la figure 3.9. La microscopie optique en champ proche propose de capter ce champ évanescent grâce à une nano-sonde et ainsi d'avoir le maximum d'informations sur l'objet étudié. Pour cela, on utilise une pointe effilée, soit diélectrique, soit métallisée. La difficulté de la mesure se situe dans l'approche de cette pointe aussi proche que possible de la surface de la structure mais aussi de son contrôle à cette petite distance. Généralement, les valeurs de la distance pointe-échantillon se situent entre 5 et 40 nm. La moindre variation et la pointe vient toucher l'objet, détruisant inévitablement la pointe et abîmant également l'objet. Nous donnons maintenant un peu plus de détails sur le principe de contrôle de la pointe près de la surface de l'échantillon.

Contrôle de la pointe

Les pointes sont fabriquées par étirage à chaud d'une fibre optique dénudée à l'aide d'une étireuse de chez Sutter Instrument. Le diamètre de la partie effilée se situe entre 50 et 100 nm. Au vue de ces dimensions, on comprend aisément la fragilité de celle-ci. Pourtant, elle doit rester à une distance constante de la surface de l'échantillon située entre 5 et 40 nm, ceci étant fait avec une boucle d'asservissement. La pointe est collée sur un diapason d'horloger [110], diapason lui-même relié à un tube piézoélectrique. Le système pointe-diapason vibre à une fréquence de résonance voisine de 32 kHz. Son amplitude de vibration sert de référence au système. En s'approchant de la surface, les vibrations sont modifiées par des forces dites de cisaillement ou shear-force. La pointe se rapproche de la surface si les forces de cisaillement diminuent, et au contraire elle s'éloigne si les forces sont trop fortes de manière à conserver la référence d'amplitude. Le tube piézoélectrique permet d'assurer le maintien de cette consigne en déplaçant verticalement et de façon nanométrique le système pointe-diapason. De plus, le tube assure le balayage de la surface étudiée suivant les directions x et y . La figure 3.10 indique le principe de suivi de la surface pour une distance constante. La topographie donnée par le système shear-force dépend fortement du temps de réponse de la boucle d'asservissement. Cela peut se traduire par des flancs inclinés pour la structure ou des oscillations parasites.

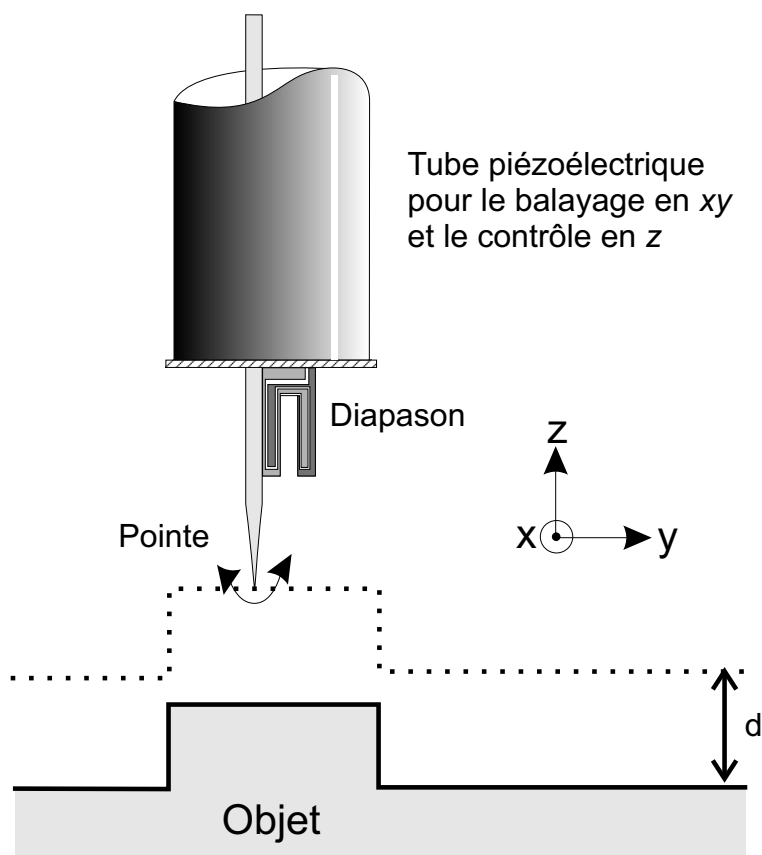


Figure 3.10 – Schéma de principe d'un enregistrement à distance constante.

3.3.2 Schéma expérimental

Les échantillons testés sont des anneaux creusés dans une couche d'or déposée sur un substrat de verre. Nous avons testé deux structures sur or mais avec des dimensions différentes. Ces deux structures ont été fabriquées par les méthodes décrites précédemment : par lithographie électronique pour la structure 1, par gravure ionique pour la structure 2. Les dimensions des structures testées sont regroupées dans le tableau 3.4, sachant que la période p est égale à 500 nm pour les deux structures.

Tableau 3.4 – Tableau des dimensions des anneaux testés en champ proche optique en mode réflexion.

	Structure 1	Structure 2
Diamètre intérieur	250 nm	200 nm
Diamètre extérieur	330 nm	280 nm
Épaisseur	150 nm	100 nm

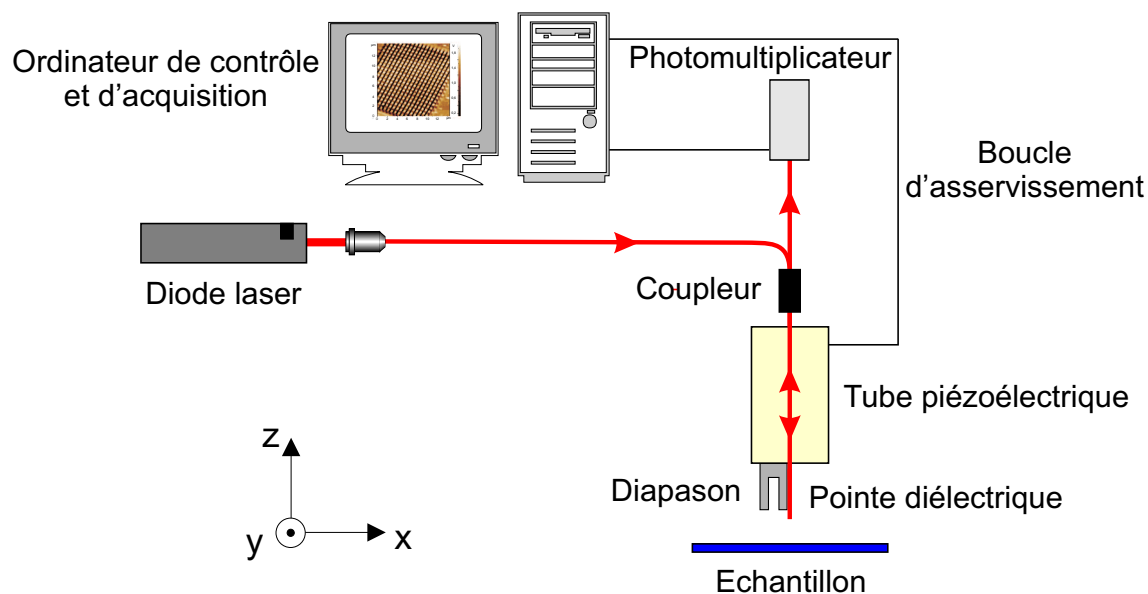


Figure 3.11 – Schéma expérimental de la caractérisation par microscopie optique en champ proche en mode réflexion.

Rappelons ici que la structure 1 a permis l'obtention d'un pic de transmittance de 17% dans le visible (voir figure 1.8 à la page 25), pic correspondant à une harmonique du mode fondamental TE_{11} [79]. Le schéma expérimental est le même pour les deux échantillons. Il est décrit sur la figure 3.11. Les images en champ proche sont réalisées à l'aide d'un microscope commercial SMENA. Celui-ci est utilisé en mode réflexion (*Reflection Scanning Near-field Optical Microscope RSNOM*) [111]. La pointe utilisée est une fibre optique non métallisée étirée avec la méthode donnée précédemment. Une diode laser, dont la longueur d'onde d'émission est de 632,8 nm, sert de source d'illumination. La lumière est envoyée sur la structure par l'intermédiaire de la pointe diélectrique. Le signal lumineux réfléchi par l'objet est également capté par cette même pointe. Un coupleur nous permet de séparer les deux signaux. La lumière réfléchie est enregistrée par un photomultiplicateur puis analysée par un logiciel informatique. En parallèle de l'information lumineuse, les variations de distance de la pointe imposées par la boucle d'asservissement shear-force nous permettent de remonter à la topographie de la structure. Les images optiques et topographiques sont enregistrées simultanément. Les résultats sont présentés sur les figures 3.13 et 3.14.

La longueur d'onde de travail n'a pas été choisie au hasard : en effet, le mode TE_{11} ne se propage pas à la longueur d'onde d'émission de la diode laser comme l'indique les

figures 3.12(a) et (b). Ce mode reste donc confiné sur la surface de l'objet. L'intensité lumineuse décroît à l'intérieur du guide annulaire et finit par s'atténuer complètement. Cette remarque justifie l'utilisation du microscope optique en champ proche en mode réflexion.

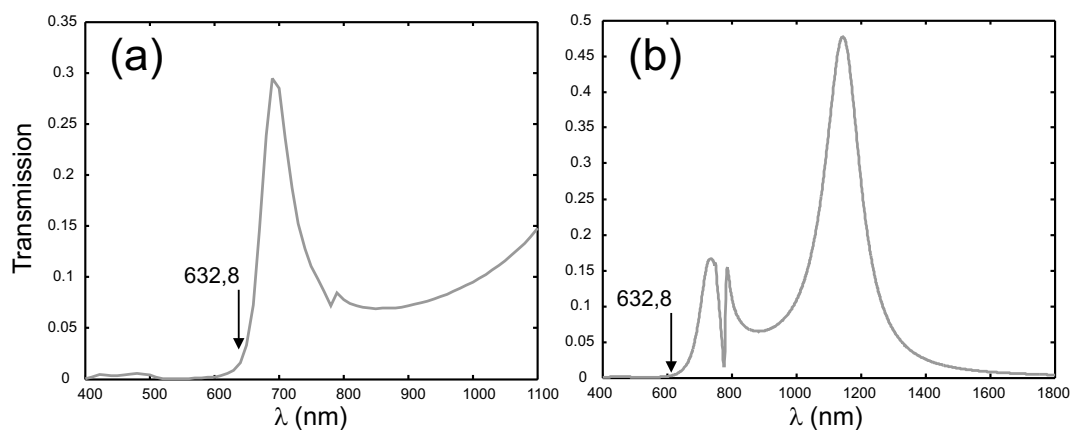


Figure 3.12 – Spectres de transmission des structures annulaires étudiées : (a) pour la structure 1 et (b) pour la structure 2.

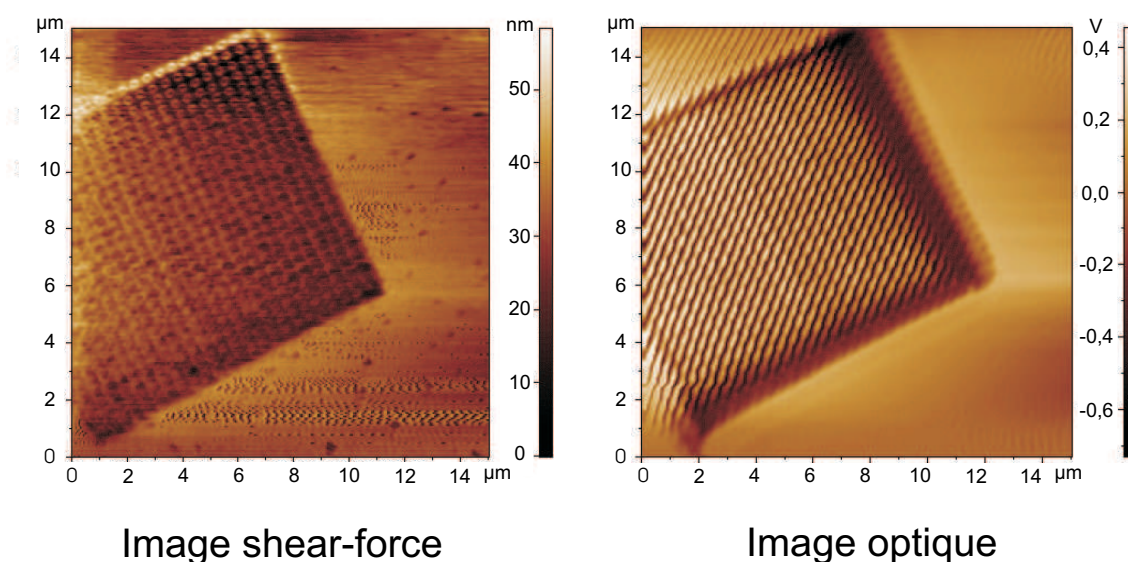


Figure 3.13 – Images topographique et optique enregistrées par microscopie optique en champ proche en réflexion de la structure annulaire 1.

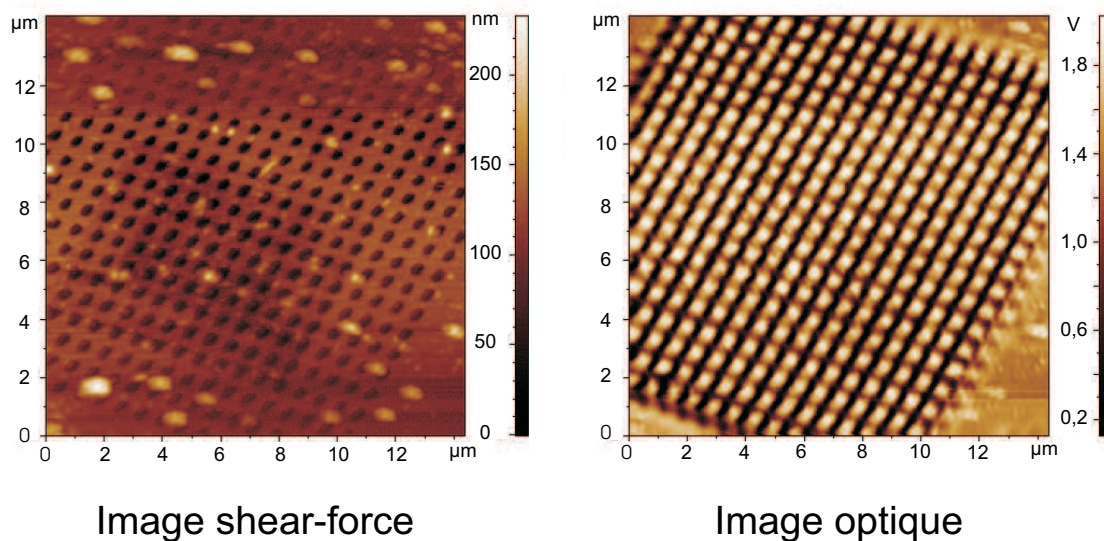


Figure 3.14 – Images topographique et optique enregistrées par microscopie optique en champ proche en réflexion de la structure annulaire 2.

3.3.3 Résultats expérimentaux

Avant d’analyser les résultats, remarquons que les figures shear-force ne permettent pas de résoudre la structure annulaire fine de nos échantillons. La surface balayée par la pointe est beaucoup trop grande dans les deux cas (environ $14 \times 14 \mu\text{m}^2$) pour arriver à reproduire la forme annulaire de la structure. Ces images permettent tout de même de repérer leur position dans la matrice. Pour cette expérience, nous ne nous servons pas de la microscopie champ proche pour obtenir le détail le plus fin de l’échantillon, mais nous nous en servons pour recueillir le champ électromagnétique le plus proche de la surface.

Les images optiques présentent, toutes les deux, des franges d’interférences situées au-dessus de la matrice. Ces franges sont un phénomène courant en microscopie optique en champ proche. Elles peuvent être dues à l’interaction entre le champ lumineux incident avec le champ diffracté par la structure, à l’influence de la pointe ou encore à des plasmons. De plus, la polarisation expérimentale n’est pas bien contrôlée à cause de la propagation dans la pointe, ce qui contribue au brouillage de l’image optique. Pour éliminer ces franges, on filtre l’image à l’aide d’une transformée de Fourier rapide ou *Fast Fourier Transform* (FFT) en deux dimensions. Les fréquences spatiales correspondant aux interférences sont enlevées. Les figures 3.15(a) et 3.16(a) montrent les images optiques après filtrage.

En éliminant les fréquences spatiales de ces franges, on met en évidence l’information

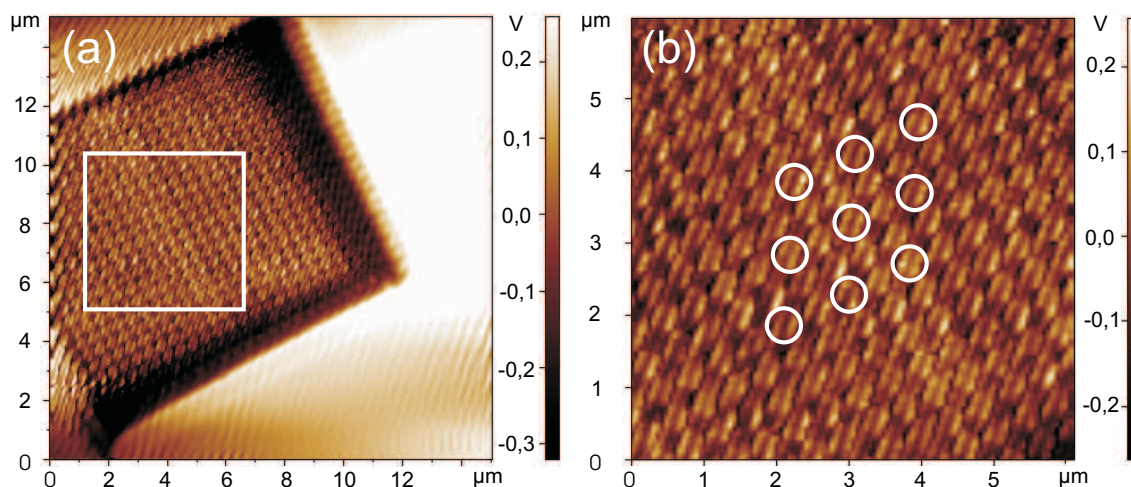


Figure 3.15 – (a) : image optique de la figure 3.13 filtrée à l'aide d'une transformée de Fourier ; (b) : agrandissement numérique correspondant à la zone carrée de la figure 3.15(a). La mise en évidence de la forme en « grain de café » du champ électromagnétique à la surface de la structure 1 est nettement visible. Les cercles blancs marquent la position des anneaux.

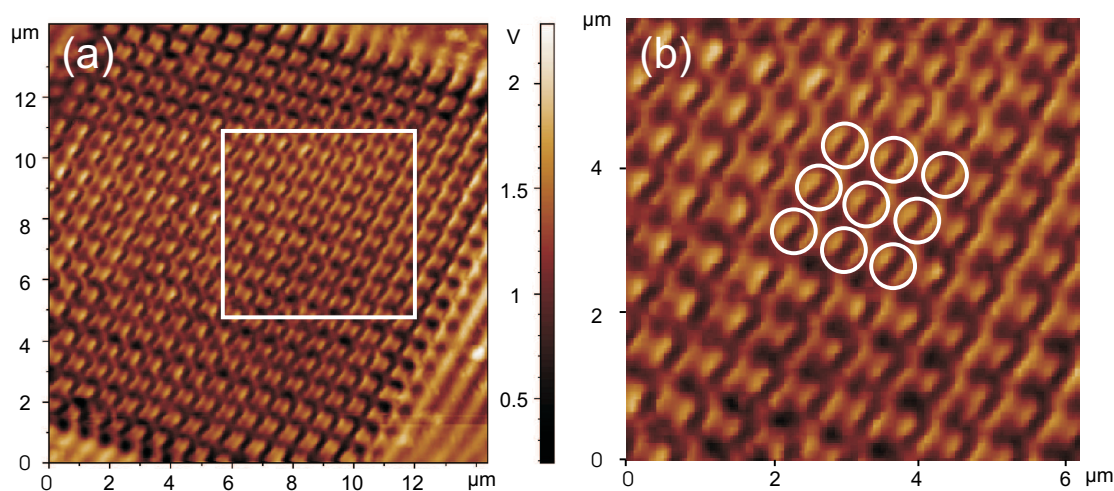


Figure 3.16 – (a) : image optique de la figure 3.14 filtrée à l'aide d'une transformée de Fourier ; (b) : agrandissement numérique correspondant à la zone carrée de la figure 3.16(a). La mise en évidence de la forme en « grain de café » du champ électromagnétique à la surface de la structure 2 est nettement visible. Les cercles blancs marquent la position des anneaux.

lumineuse portée par les autres fréquences. Cette information fait apparaître la distribution spatiale du champ électromagnétique en forme de « grain de café » proche de la

surface de l'échantillon. Cette forme correspond aux deux lobes d'intensité du mode TE_{11} se situant dans la cavité annulaire. Les figures 3.15(b) et 3.16(b) sont un zoom numérique correspondant à la zone carrée des figures 3.15(a) et 3.16(a) et elles rendent la visualisation des deux lobes beaucoup plus évidente. De plus, sur ces figures, la position des anneaux est indiquée par des cercles, position déduite à partir de l'image shear-force. Une simulation numérique réalisée avec notre code FDTD a permis une confirmation théorique des résultats expérimentaux. Dans cette simulation, l'échantillon est illuminé par une onde plane dont le champ électrique est polarisé linéairement. Le champ électromagnétique réfléchi est enregistré au-dessus de la structure à une distance de 30 nm. Le résultat est donné sur la figure 3.17 : il donne le module carré des composantes tangentes du champ diffracté par la structure si on considère que la pointe diélectrique est suffisamment fine pour se comporter comme un dipôle ne captant que les composantes parallèles à l'interface [112, 113]. Les deux structures n'ont pas été modélisées puisque la forme du champ pour le mode guidé étudié ne change pas. Une seule simulation est donc suffisante.

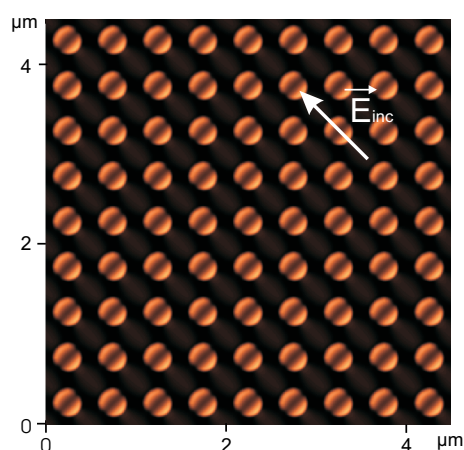


Figure 3.17 – Image théorique du champ électromagnétique au-dessus des structures annulaires possédant la géométrie 1 obtenue par calcul FDTD ($4,5 \times 4,5 \mu\text{m}^2$). La polarisation du champ incident est indiquée par la flèche dans le coin supérieur droit.

La polarisation du champ électrique incident est indiquée sur la figure, elle est orientée à 45° . Les deux lobes sont orientés suivant la direction de ce champ. On retrouve bien les deux lobes présents sur les figures 3.15(b) et 3.16(b). Il y a un très bon accord entre la théorie et l'expérience pour deux structures différentes. Cette expérience valide la présence du mode guidé TE_{11} dans les structures annulaires. Ce travail a fait l'objet de deux publications [114, 115].

3.4 Caractérisation en microscopie optique en champ proche en mode transmission

Dans cette partie, nous montrons une caractérisation de la structure 3 (voir la figure 3.7 à la page 74) obtenue toujours à l'aide d'un microscope champ proche qui est utilisé, cette fois, en mode transmission. Le champ électromagnétique est capté par une pointe diélectrique après son passage à travers la structure. Après une présentation du schéma expérimental, l'influence de la longueur d'onde d'illumination, ainsi que celle de la polarisation, est étudiée. Les résultats présentés ici sont les premiers obtenus sur ce type de structure et font l'objet d'une publication acceptée par *Journal of Microscopy* [115].

3.4.1 Schéma expérimental

La structure étudiée est une matrice d'ouvertures annulaires de diamètres intérieur et extérieur respectivement égaux à 100 nm et 200 nm avec une période de 500 nm. Cette structure a été réalisée par gravure ionique à l'EPFL dans une couche de 125 nm d'argent. Le schéma expérimental est donné sur la figure 3.18.

La source blanche est générée par un laser pulsé à 9 kHz à la longueur d'onde λ de 532 nm envoyée dans une vingtaine de mètres de fibre à dispersion décalée. Les impulsions ont une durée inférieure à 1 ns. Le continuum de lumière blanche est créé par des phénomènes non-linéaires de mélanges à quatre ondes et de dispersion Raman [116]. Le spectre de lumière blanche est tracé sur la figure 3.19.

La polarisation du faisceau incident servant à illuminer l'échantillon est contrôlée par un polariseur Glan-Taylor. De plus, un filtre interférentiel permet de choisir la longueur d'onde d'illumination de l'échantillon. La lumière transmise est captée par un microscope champ proche commercial de marque SMENA par l'intermédiaire d'une fibre diélectrique.

3.4.2 Influence de la longueur d'onde

Les premiers résultats concernent l'influence de la longueur d'onde (figure 3.21).

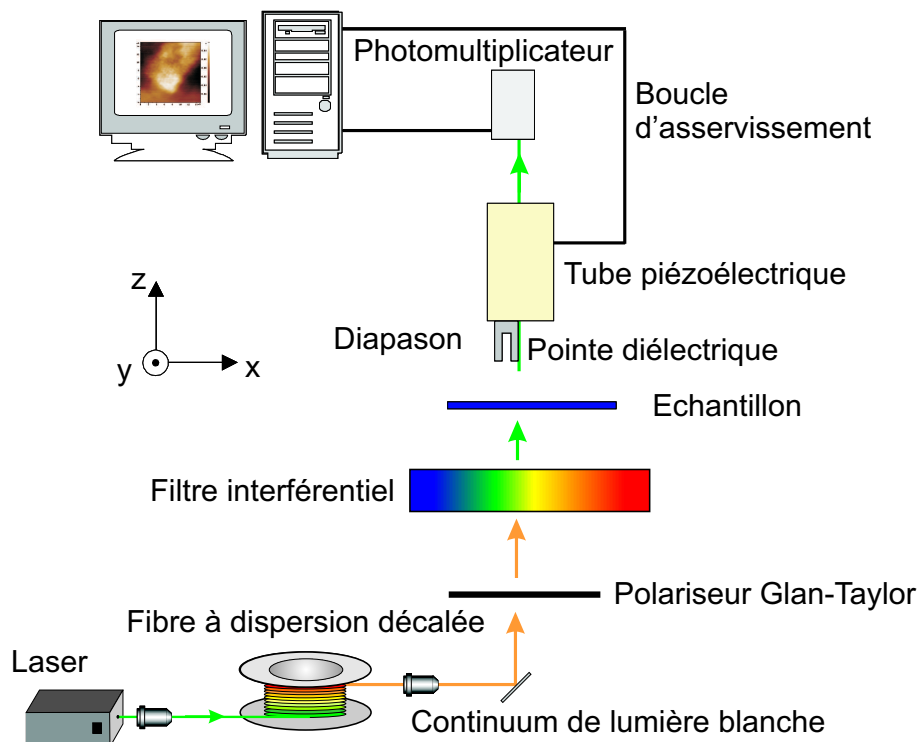


Figure 3.18 – Schéma expérimental de microscopie optique en champ proche en mode transmission pour déterminer l'influence de la longueur d'onde et de la polarisation.

La polarisation est maintenue constante suivant la direction y de la figure 3.18 pour chaque image. Les images topographiques et optiques sont enregistrées pour les longueurs d'onde suivantes : $\lambda = 578 \text{ nm}$, 608 nm et 622 nm . Ces longueurs d'onde sont choisies dans la plage spectrale offerte par notre source blanche pour couvrir au mieux le pic de transmission théorique de la structure 3.22. Les images topographiques sont identiques, prouvant que la même surface a bien été balayée pour chaque longueur d'onde. L'intensité des images optiques est normalisée par l'intensité de la source blanche de chaque longueur d'onde étudiée. Enfin, toutes les images optiques possèdent la même échelle d'intensité pour permettre de les comparer.

Nous constatons, premièrement, que de la lumière est présente en dehors de la zone de la matrice et que la forme en « grain de café » attendue n'est pas résolue dans cette expérience. Une forme non symétrique de la pointe, sa convolution avec l'objet, la présence de plasmons ainsi que la détection probable de l'ordre zéro peuvent expliquer ce phénomène. De plus, lorsque la longueur d'onde augmente, l'intensité lumineuse captée par la pointe diminue. L'interprétation de ce résultat n'est pas claire actuellement. L'augmentation de la longueur d'onde correspond également à l'augmentation de la transmission par

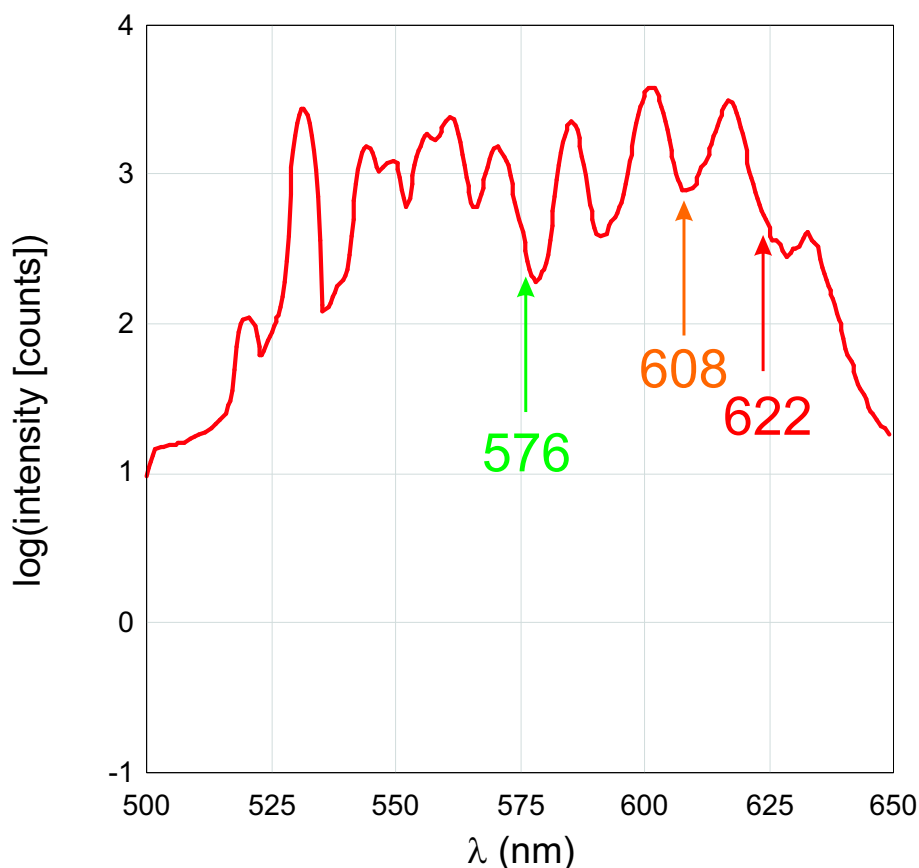


Figure 3.19 – Spectre du continuum de lumière blanche utilisé en microscopie optique en champ proche en mode transmission. Les longueurs d’onde étudiées expérimentalement sont signalées sur la courbe.

ces structures de la lumière mais en champ lointain comme l’indique la figure 3.22. Une explication envisagée est que la pointe ne vient perturber que le champ situé sur la surface et ne capte pas correctement le champ émis. Des études sont menées pour comprendre ce phénomène avec l’utilisation d’une pointe métallisée pour augmenter la résolution afin de mettre en évidence la forme annulaire du champ au-dessus des cavités.

3.4.3 Influence de la polarisation

Un deuxième résultat expérimental concerne l’influence de la polarisation sur la transmission. Le montage utilisé est toujours celui de la figure 3.18 et les résultats sont représentés sur la figure 3.23.

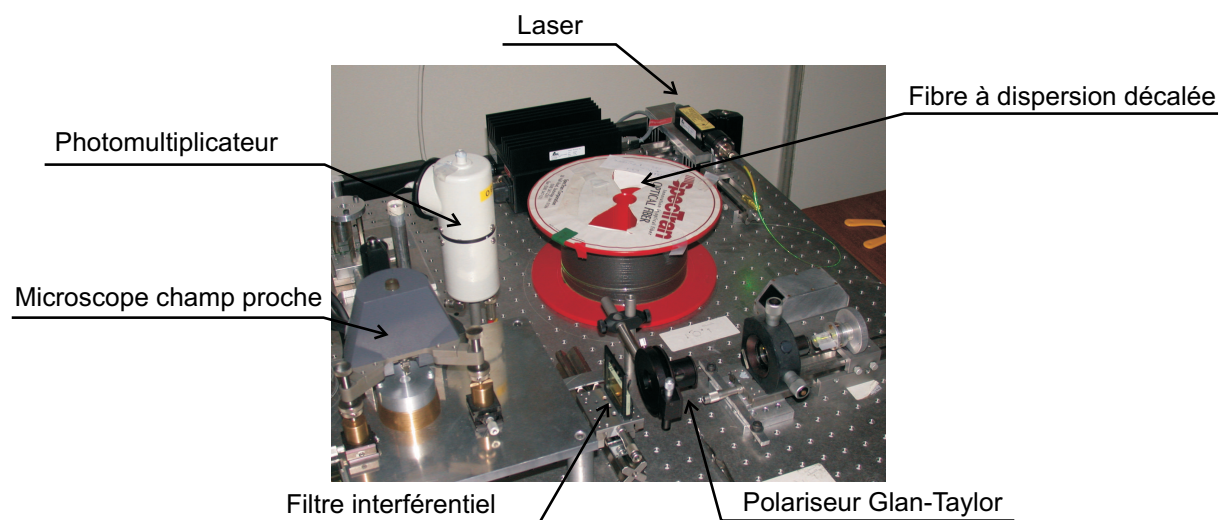


Figure 3.20 – Photographie du schéma expérimental pour la caractérisation en champ proche optique des matrices d'ouverture annulaire.

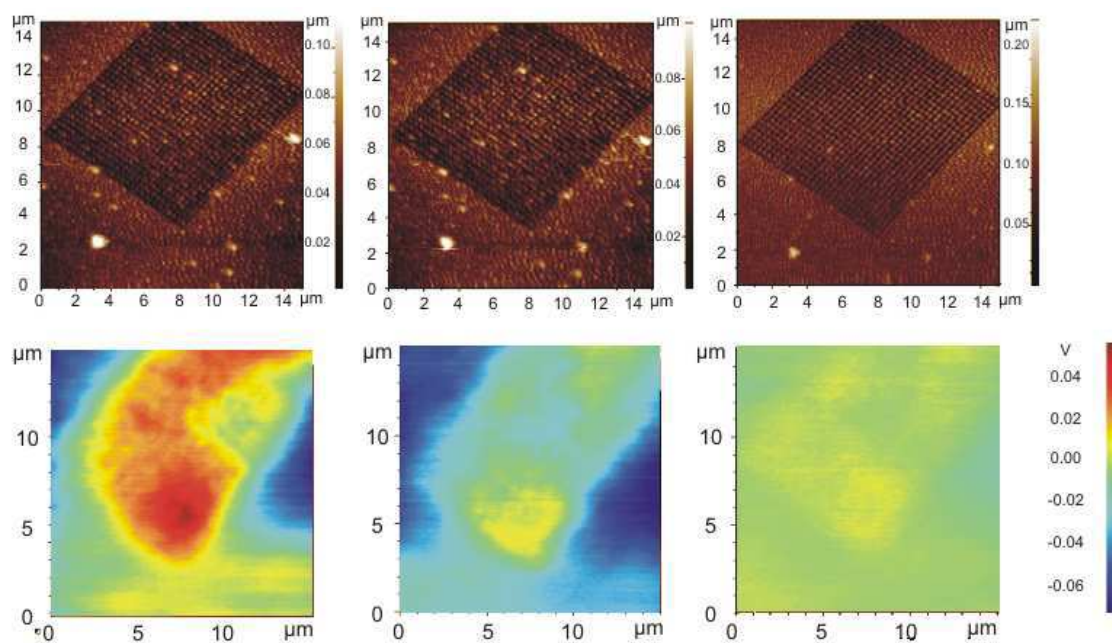


Figure 3.21 – Images topographiques et optiques des structures annulaires dans une couche d'argent, enregistrées avec la même polarisation incidente mais à des longueurs d'onde différentes ; de gauche à droite : $\lambda = 578$ nm, 608 nm et 622 nm.

Dans ce cas également, la même surface est balayée, comme l'attestent les images topographiques. La longueur d'onde reste identique et est fixée à la longueur d'onde λ de 622 nm, proche du pic du transmission (figure 3.22). Seule la polarisation change pour passer de la direction y à une direction de 45° par rapport à ce même axe. Les images op-

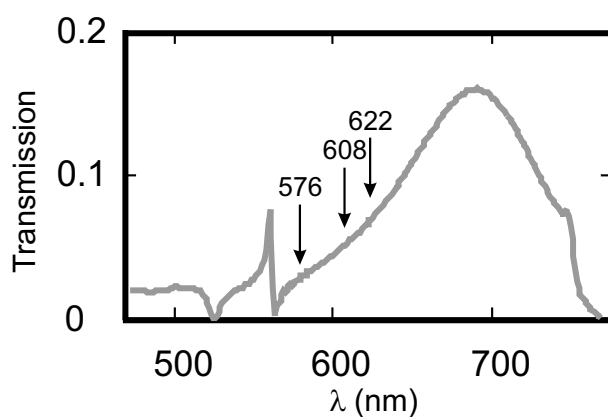


Figure 3.22 – Transmission théorique entre les longueurs d’onde de 500 nm et 700 nm pour la structure étudiée.

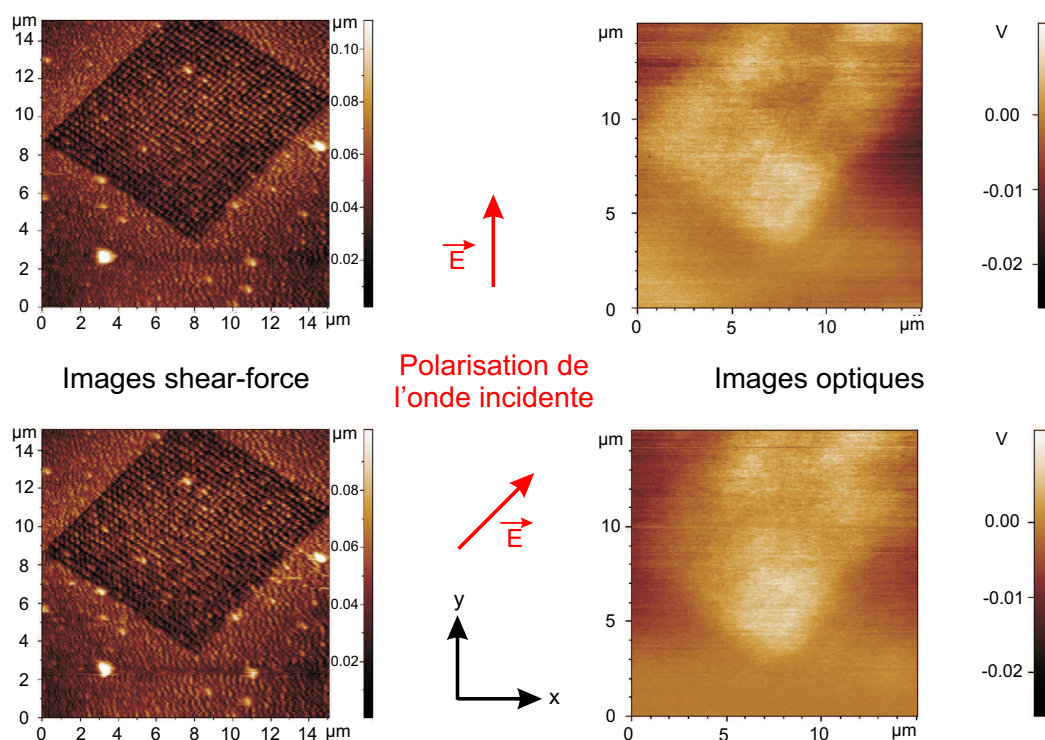


Figure 3.23 – Images topographiques et optiques des structures annulaires dans la couche d’argent, enregistrées à la même longueur d’onde de $\lambda = 622$ nm mais avec des polarisations différentes.

tiques ont une échelle de niveau identique pour pouvoir les comparer. Elles présentent une grande similitude (même variation d’intensité) et aucune structure particulière n’apparaît comme précédemment. Les anneaux, de par leur symétrie circulaire, ne sont théoriquement pas sensibles à la polarisation et il est donc tout à fait normal que les images soient

identiques. La polarisation n'a pas d'influence significative sur la réponse en champ proche de nos structures.

3.5 Spectres de transmission de la lumière à travers des structures annulaires

La structure étudiée dans le paragraphe précédent ne présentant dans le visible qu'une faible transmission (figure 3.7 page 74), nous nous proposons d'étudier maintenant la matrice 1 (figure 3.7 page 74) dont le spectre de transmission théorique donne une transmittance de l'ordre de 90%. L'ordre de grandeur de cette transmission représente un challenge expérimental fort intéressant à relever. Cette partie décrit l'expérience mise en place pour obtenir ce résultat et les spectres de transmission obtenus ainsi que leur évolution en fonction de la polarisation de l'onde incidente.

3.5.1 Description du schéma expérimental

Le schéma expérimental qui a permis la validation de la forte transmission de la lumière à travers les nanostructures est donné sur la figure 3.24.

Un continuum intense de lumière blanche, d'intensité de l'ordre de 100 mW, est envoyé sur l'échantillon. La source blanche utilisée dans notre expérience est une source totalement développée, montée et étudiée dans notre laboratoire dans le cadre du travail de thèse de Céline Courvoisier [117]. Ce continuum est créé par un laser femto-seconde (MaiTai® de chez SpectroPhysics) dont la lumière est focalisée dans une fibre photonique. La fibre utilisée est une fibre de type NL.PM.750 de Crystal Fiber à maintien de polarisation. Ses principales caractéristiques sont reprises dans le tableau 3.5 :

La longueur d'onde de la lumière injectée dans la fibre est de 800 nm. Le laser est pulsé à 80 MHz. Les impulsions du laser ont une durée inférieure à 100 fs, de puissance moyenne égale à 0,8 W et de puissance crête de 125 kW. L'injection se fait à l'aide d'une lentille asphérique de focale 2 mm et d'ouverture numérique 0,5. Ce faisceau lumineux pulsé est injecté dans un mètre de fibre photonique. La création de ce continuum se fait par l'intermédiaire de processus non-linéaires de mélange quatre ondes et de diffusion

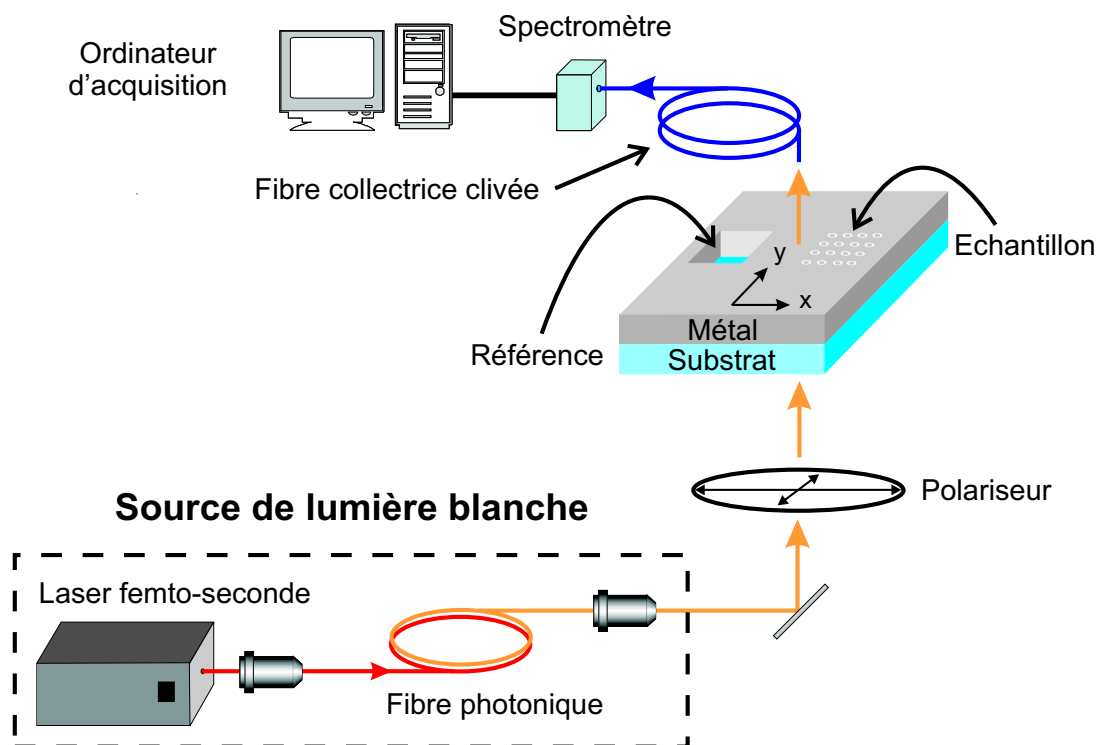


Figure 3.24 – Schéma expérimental pour l'acquisition des spectres de transmission de la lumière à travers les films métalliques nanostructurés.

Tableau 3.5 – Tableau récapitulatif des caractéristiques de la fibre photonique NL.PM.750 utilisée pour la création du continuum de lumière blanche.

Matériau	silice pure
Longueur	1 m
Diamètre de cœur	1,8 μm
Diamètre de gaine	120 μm
Géométrie	hexagonale
Ouverture numérique	0,38
Zéro de dispersion	780 nm
Coefficient non linéaire	95 $\text{W}^{-1}.\text{km}^{-1}$

Raman [118]. Le spectre de la source blanche utilisée est présenté sur la figure 3.25.

Le faisceau incident issu du continuum est polarisé puisque l'excitation du mode guidé n'est possible que pour une polarisation linéaire. Le polariseur employé est un simple film polaroid, efficace sur la plage spectrale étudiée. Ensuite, le faisceau parallèle est

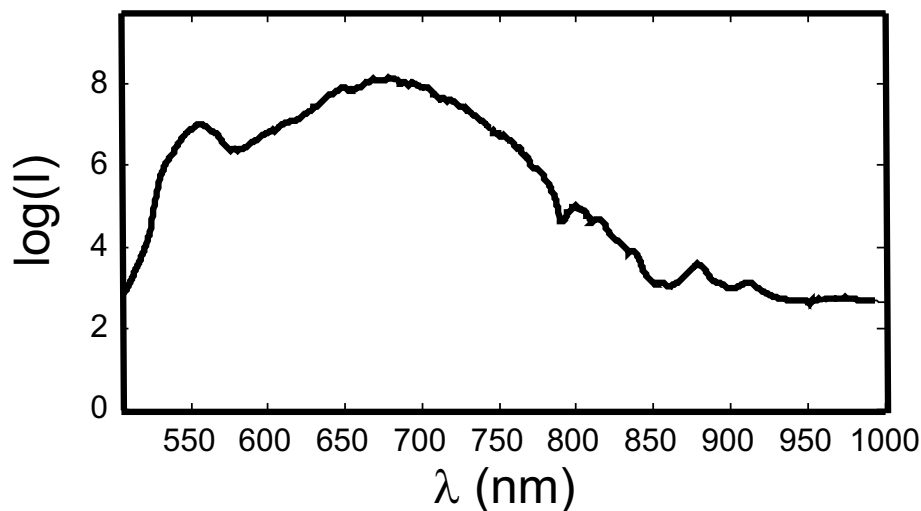


Figure 3.25 – Spectre du continuum de lumière blanche utilisé pour l’obtention des spectres de transmission.

envoyé sur l’échantillon sous incidence normale. La lumière transmise est captée par une fibre optique multimode clivée placée au-dessus de l’échantillon à une cinquantaine de microns. Au vue des dimensions des matrices utilisées, seul l’ordre zéro de diffraction se propage. Les ordres suivants sont tous évanescents. La fibre collectrice ne capte alors que l’ordre zéro qui est transmis à un spectromètre USB2000[®] de chez OceanOptics. Ce spectromètre permet d’obtenir directement le spectre de transmission de la lumière à travers nos structures sub-longueur d’onde métalliques. Il est à noter que des platines de translation nous permettent d’obtenir le meilleur alignement possible entre le faisceau injecté, l’échantillon et la fibre de collection.

Le spectre expérimental de transmission est défini comme le rapport de l’intensité enregistrée au-dessus de l’échantillon sur l’intensité enregistrée au-dessus de nos références. Ces références sont des carrés creusés dans la couche d’argent de même aire que les matrices de structures annulaires correspondantes. Pour éviter d’avoir à réaliser autant de référence que de matrice, on peut montrer que la transmittance s’obtient en prenant en compte un facteur de surface (surface du cœur de la fibre divisée par la surface de la matrice). Nous avons enregistré les intensités transmises à travers plusieurs ouvertures carrées servant de référence. Il en ressort que cette transmission est proportionnelle à leur surface comme le montre la courbe 3.26. Le coefficient de régression linéaire R^2 est très voisin de 1.

Les incertitudes sont déterminées à partir d’une statistique gaussienne. Cette courbe nous permet de valider l’emploi d’un facteur de surface. La normalisation peut donc se

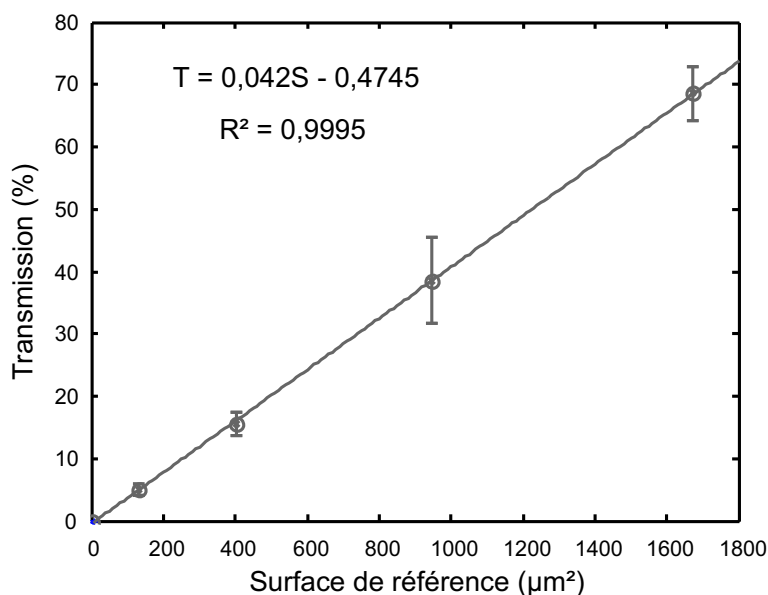


Figure 3.26 – Mesure de la transmittance en fonction de la surface des références.

faire à partir d'une seule référence, un facteur multiplicatif permettant d'ajuster l'intensité transmise par une autre référence en fonction de la surface de la matrice.

3.5.2 Résultats obtenus

L'échantillon testé est un ensemble de matrices de structures annulaires creusées dans un film d'argent de 100 nm d'épaisseur déposé sur un substrat de verre. Les structures ont toutes les mêmes diamètres intérieur et extérieur : 100 nm et 200 nm. Les différences consistent dans les périodes des matrices ; certaines ont une période de 350 nm, les autres une période de 500 nm. De plus, le nombre de périodes peut varier d'une matrice à l'autre : 20×20, 30×30 et 40×40. L'ensemble des matrices a été fabriqué par gravure ionique à la centrale de technologie Mimento de Besançon. La figure 3.27 montre la qualité des échantillons grâce à des images enregistrées au MEB.

Mesure de la transmission

Les résultats expérimentaux obtenus sont donnés sur la figure 3.28 par les courbes en rouge. L'expérience a été menée sur deux structures identiques de période égale à 350 nm mais de taille différente : nous avons enregistré les spectres de transmission à travers les

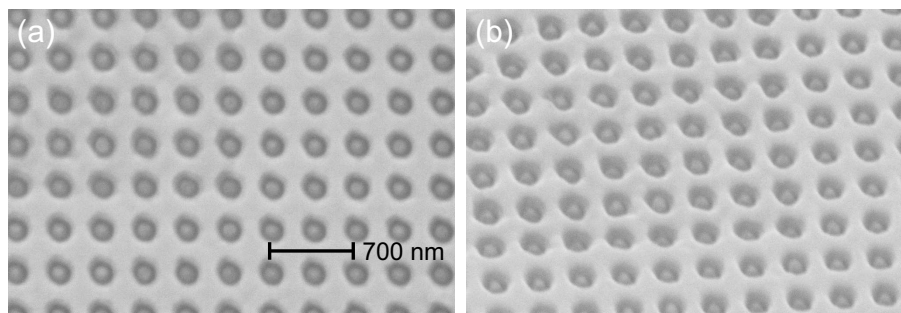


Figure 3.27 – Images MEB des structures étudiées (diamètre intérieur 100 nm, diamètre extérieur 200 nm et période 350 nm) dans une couche d’argent de 100 nm d’épaisseur ; (a) : vue de dessus de quelques périodes, (b) : vue inclinée à 40°.

matrices 30×30 et 40×40 périodes, ce qui donne des dimensions respectives de l’ordre de $100 \mu\text{m}^2$ et de $190 \mu\text{m}^2$. Nous obtenons pour les deux matrices le même résultat malgré des surfaces différentes. Un large pic de transmission apparaît à la longueur d’onde λ de 660 nm. Ce pic correspond à l’excitation du mode guidé dans la cavité annulaire TE_{11} . Les simulations effectuées avec le code FDTD montrent une bonne concordance avec les mesures expérimentales (courbes en bleu sur la figure 3.28). Le pic théorique se situe à la longueur d’onde de coupure du mode, dans notre cas λ_c prend la valeur de 675 nm. Insistons sur le fait que c’est la première fois qu’une telle transmittance est atteinte. Le faible écart entre les deux longueurs d’onde où se situent les pics de transmission théorique et expérimentaux peut s’expliquer de plusieurs manières.

Une première hypothèse provient de la manière dont on dépose le métal. Dans nos simulations, nous utilisons des données tabulées [86, 87]. Ces dernières ne correspondent pas forcément à la couche de métal utilisée. La manière de déposer le métal peut changer les valeurs de la partie réelle et imaginaire de sa permittivité. Il semble que le dépôt par pulvérisation et celui par évaporation ne modifient pas énormément les valeurs données. Une étude doit être lancée pour voir l’impact de ce phénomène.

Une deuxième hypothèse provient de la forme de la cavité. Jusqu’à présent, les anneaux possèdent des flancs droits. Le fait que les flancs de la structure peuvent être inclinés n’est pas pris en compte. Ceci est pratiquement toujours le cas dans la fabrication de la structure. De plus, ces flancs inclinés peuvent modifier la valeur des diamètres de nos structures. Pour connaître l’impact de la forme, nous avons pris une cavité comme référence pour nos simulations. Cette cavité est donnée sur la figure 3.29. Cet objet est déduit à partir de l’image obtenue au MEB (figure 3.27). Le fait de digitaliser une structure

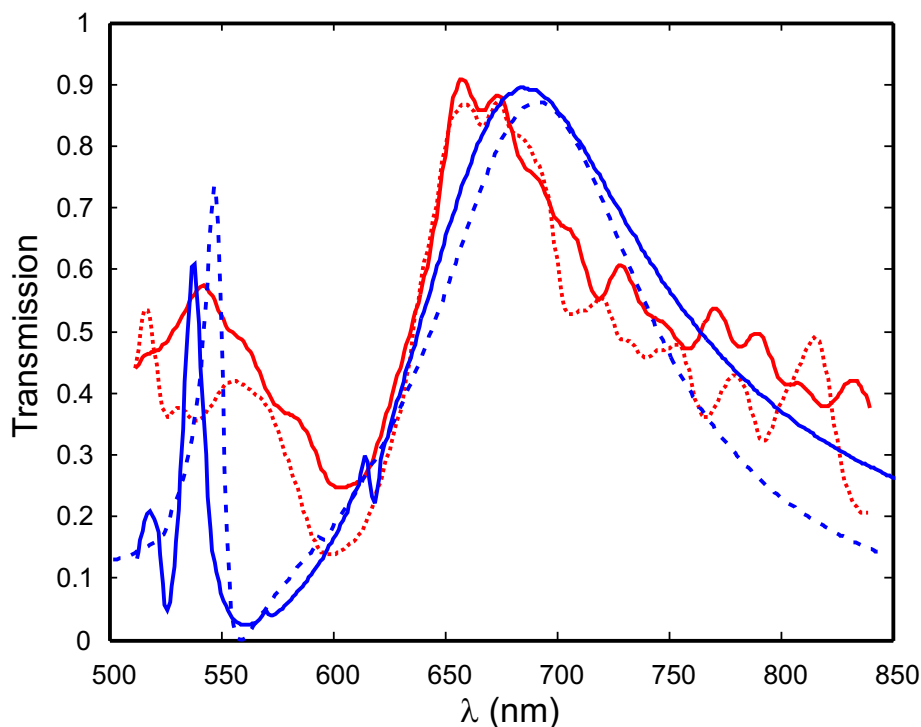


Figure 3.28 – Spectres de transmission, théoriques en bleu, et expérimentaux en rouge, à travers deux structures annulaires possédant les mêmes diamètres intérieur et extérieur (100 nm et 200 nm respectivement) et la même période (350 nm) mais de tailles différentes. Ligne en pointillé bleu : courbe théorique de la structure parfaite; ligne en trait bleu : courbe théorique obtenue à partir d’une structure donnée par une image enregistrée au microscope électronique. Ligne en pointillé rouge : la matrice possède 30×30 périodes ($\simeq 100 \mu\text{m}^2$); ligne en trait rouge : la matrice possède 40×40 périodes ($\simeq 190 \mu\text{m}^2$).

annulaire de cette image fait apparaître deux pics sur l’âme de la cavité annulaire. Ces deux pics sont uniquement dus au passage de l’image à la structure numérique par analyse des niveaux de gris de l’image. Il donne néanmoins une bonne indication du manque de symétrie de nos échantillons et permet d’en tenir compte dans nos calculs. La courbe en trait plein bleu de la figure 3.28 donne le résultat de ce calcul. On remarque que la position du pic ($\lambda \simeq 690 \text{ nm}$) se rapproche légèrement de celui obtenu expérimentalement. La forme de la structure est primordiale sur la position du pic de transmission. Toutes les cavités sont identiques dans l’objet théorique alors que chaque cavité expérimentale est unique et diffère des autres. Néanmoins, la forme de l’échantillon reste un critère important.

Enfin, une dernière hypothèse implique le caractère fini ou infini des structures. En

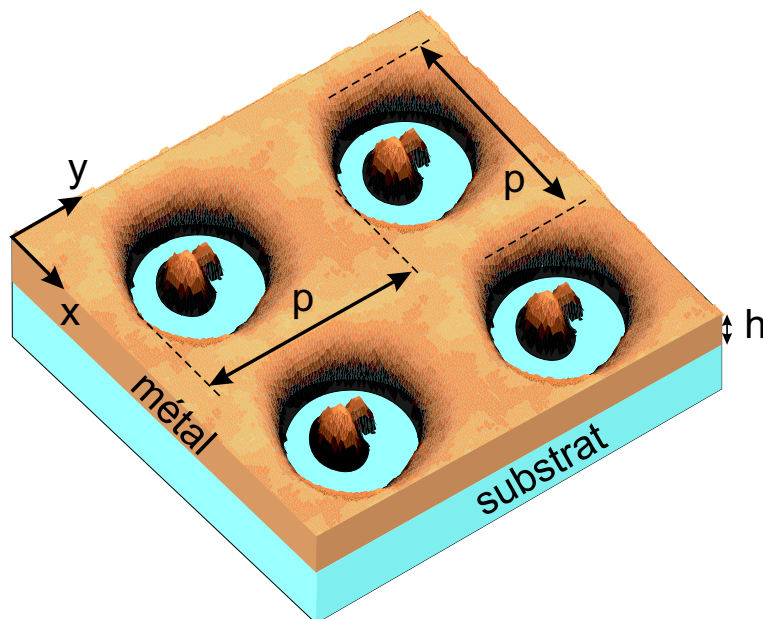


Figure 3.29 – Structure introduite dans notre code FDTD (2×2 périodes) déduite de l'image réalisée au microscope électronique à balayage (figure 3.27).

effet, les matrices expérimentales ont une dimension finie alors que la matrice théorique est infinie. Ce calcul serait réalisable mais demanderait un temps tellement long et une place mémoire tellement vaste qu'il n'est pas envisageable actuellement. Néanmoins, des travaux récents [119] montrent que le passage d'une matrice infinie à une matrice finie implique un décalage de la position du pic vers le bleu. Cette constatation explique aussi le décalage du pic entre nos expériences et nos simulations.

Toutes les critiques (méthode de dépôt, symétrie des structures, calcul avec un nombre fini de structures annulaires) formulées dans cette partie sont justifiées et nous en avons conscience pour l'amélioration de nos simulations.

Influence de la polarisation

La symétrie de révolution de nos structures annulaires implique que le spectre de transmission ne dépende pas de la polarisation du faisceau incident quand celle-ci est linéaire. Ces résultats ont été montrés de façon théorique dans le chapitre précédent. Nous avons mené des expériences, toujours avec le montage donné sur la figure 3.24. Les résultats sont explicités sur la figure 3.30(b). L'angle de polarisation ϕ est mesuré à partir de l'axe x de la figure 3.24 à la page 90. Ces courbes montrent clairement la dépendance

en polarisation des spectres de transmission puisque la transmittance décroît au fur et à mesure que l'angle d'incidence augmente.

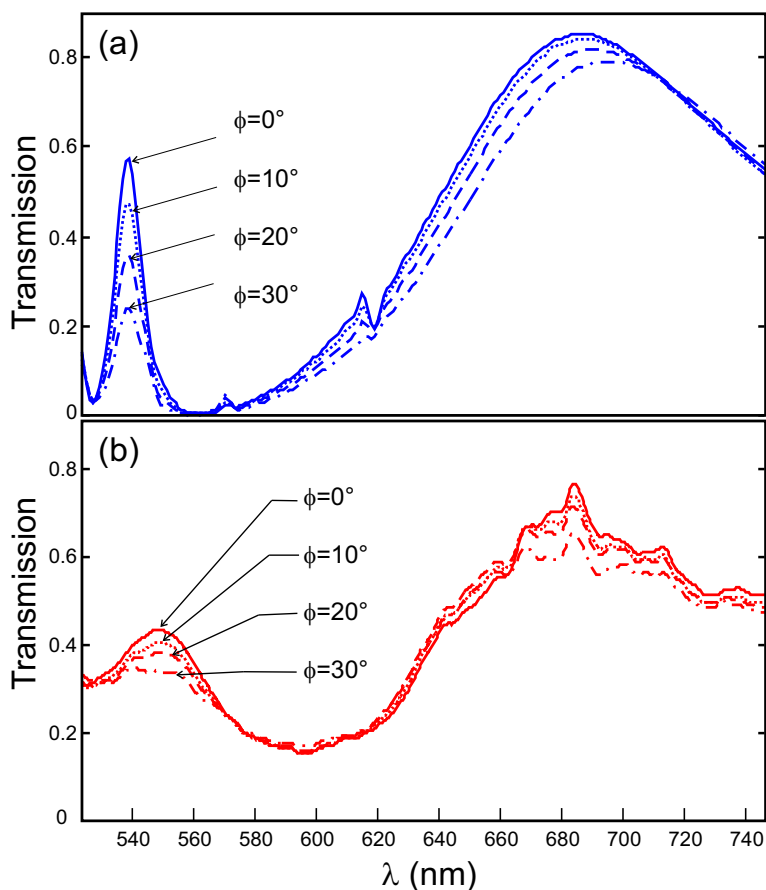


Figure 3.30 – Spectre de transmission pour différentes directions de polarisation ϕ du champ incident calculé à partir de l'axe x : 0° en trait plein, 10° en trait pointillé, 20° en trait tiret et 30° en trait pointillé-tiret ; (a) : courbes théoriques et (b) : courbes expérimentales.

Lorsque nous reprenons dans nos simulations la structure de la figure 3.29 comme objet, les courbes montrent, elles aussi, une dépendance du pic de transmission en fonction de la polarisation et on retrouve nos résultats expérimentaux. La forme de la structure, flancs inclinés et âme du coaxe, influe fortement sur la transmission. Ceci est logique puisque, contrairement à la structure idéale, la structure expérimentale ne présente plus du tout de symétrie de révolution.

Dans ces deux expériences, un deuxième pic de forte transmission apparaît autour de la longueur d'onde $\lambda \simeq 550$ nm. Ce pic correspond à l'interaction entre la résonance plasmon et le mode guidé comme nous l'avons décrit dans le chapitre 2.11.

L'ensemble de ces résultats a fait l'objet d'une publication [120]. À notre connaissance, c'est la première fois qu'un niveau de 90% de transmission de la lumière à travers des structures sub-longueurs d'onde percées dans un film métallique opaque est obtenu dans le visible. Le pourcentage de surface ouverte ne représentant que 20%, le coefficient η est égale alors à 470. Cette transmission est vraiment extraordinaire.

3.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons expliqué la technique de fabrication de nos matrices de structures, en particulier les techniques de gravure électronique et ionique. Ces structures ont été caractérisées par les techniques de microscopies. Dans un premier temps, l'usage d'un microscope classique a donné une image de la lumière transmise par ces matrices. Cette image montre leur qualité pour le filtrage de la lumière. Ensuite, le champ électromagnétique capté par un microscope optique en champ proche en mode réflexion a permis d'identifier le mode guidé de la cavité. Des expériences sont actuellement en cours pour la mise en évidence du mode de cavité en transmission.

L'expérience la plus importante et la plus significative a été celle de la mise en évidence de la forte transmission. Cette expérience a été possible grâce à l'utilisation d'un continuum de lumière blanche intense servant à l'illumination de la structure. Les résultats obtenus montrent un pic de transmission dont l'intensité atteint 90%. Ce résultat a été reproduit sur deux matrices différentes, ce qui démontre la reproductibilité de telles transmissions. La symétrie des échantillons, donc leur qualité de fabrication, pose cependant encore un problème si l'on souhaite s'affranchir de la dépendance en polarisation.

Chaque expérience a été confrontée à une validation théorique avec le code décrit dans le chapitre précédent. Nous avons obtenu un très bon accord théorie-expérience pour chaque caractérisation.

Chapitre 4

Perspectives

4.1 Introduction

Les applications liées à l'utilisation de couches métalliques nanostructurées par des ouvertures annulaires sont nombreuses : nano-composants, photolithographie et bien d'autres. Cependant, il reste de nombreux points technologiques et physiques à franchir avant d'obtenir un composant exploitable. Ce chapitre donne certaines perspectives de recherche que nous comptons développer. Un des principaux problème de nos structures est la largeur importante des pics de transmission, ce qui peut être rédhibitoire par exemple pour les utiliser comme filtre. Dans une première partie, nous explicitons donc longuement comment obtenir des pics beaucoup plus fins avec un bon niveau de transmittance à l'aide de couches métalliques nanostructurées par des ouvertures annulaires. L'impact de l'ouverture sur la position des pics n'est pas négligeable et nous montrerons pourquoi. Cette partie est beaucoup plus importante que les suivantes car le travail théorique a déjà été intégralement mené. Nous envisageons, également, l'exploitation d'une propriété importante de ces nano-ouvertures, celle de l'exaltation de champ à l'intérieur de la cavité. Celle-ci peut permettre la génération d'un second harmonique grâce à l'utilisation d'un matériau fortement non linéaire tel que le niobate de lithium. Ce matériau étant également électro-optique il est possible d'imaginer une structure commandable. Cette perspective fait l'objet de la seconde partie de ce chapitre. L'étude en fluorescence de certains corps devient également possible grâce à l'exaltation de champ présente dans les ouvertures annulaires. Ceci est le but de la troisième partie. Enfin, le mode TEM existe pour la

géométrie annulaire. Ce mode possède l'énorme avantage de ne pas avoir de longueur d'onde de coupure, comme nous l'avons déjà écrit. L'excitation de ce mode est possible sous certaines conditions que nous développerons dans une dernière partie.

4.2 Transmission au-delà de la longueur d'onde de coupure

Une grande application que l'on peut faire des structures annulaires est celle de filtrer la lumière. Mais un grand reproche apporté à cette application concerne la largeur du pic de transmission : la largeur à mi-hauteur caractérisant la qualité de ce filtre est d'une centaine de nanomètres. Pour un filtre interférentiel classique, la largeur à mi-hauteur est de l'ordre de 5 à 10 nm. Cette partie a pour but de montrer comment nous pouvons obtenir des pics beaucoup plus étroits mais aussi contrôler activement leur position.

4.2.1 Position du problème

L'idée consiste à utiliser les propriétés du Fabry-Pérot (FP) obtenu par la superposition de couches métalliques nanostructurées. La structure étudiée est donnée sur la figure 4.1. Les miroirs classiques d'une cavité FP sont remplacés par des films d'argent comprenant des ouvertures annulaires. Les paramètres de ces ouvertures sont les suivants :

- la période p est de 350 nm ;
- le rayon intérieur R_i de 75 nm ;
- le rayon extérieur R_e de 100 nm ;
- la hauteur h de chaque couche métallique de 100 nm.

Dans le but d'avoir une interprétation simple des résultats, chaque couche métallique est suspendue dans le vide pour simplifier les calculs : la permittivité ε du vide est égale à 1 ainsi que son indice n . De plus, dans un premier temps, les décalages latéraux L_x et L_y sont égaux à zéro ce qui implique que les ouvertures sont parfaitement alignées verticalement les unes par rapport aux autres. Réglons de suite leur influence sur la transmission. Les calculs ont montré que ces décalages n'ont aucune influence sur les courbes obtenues et cela quelques soient leurs valeurs. Cette propriété est très importante car elle permet d'avoir une marge technologique d'erreur lors d'une fabrication prochaine de la structure en double couche.

Le choix de la période n'est pas anodin. En effet, pour celle-ci il n'y a pas de résonance plasmon car elle se situe en dehors de la plage spectrale étudiée.

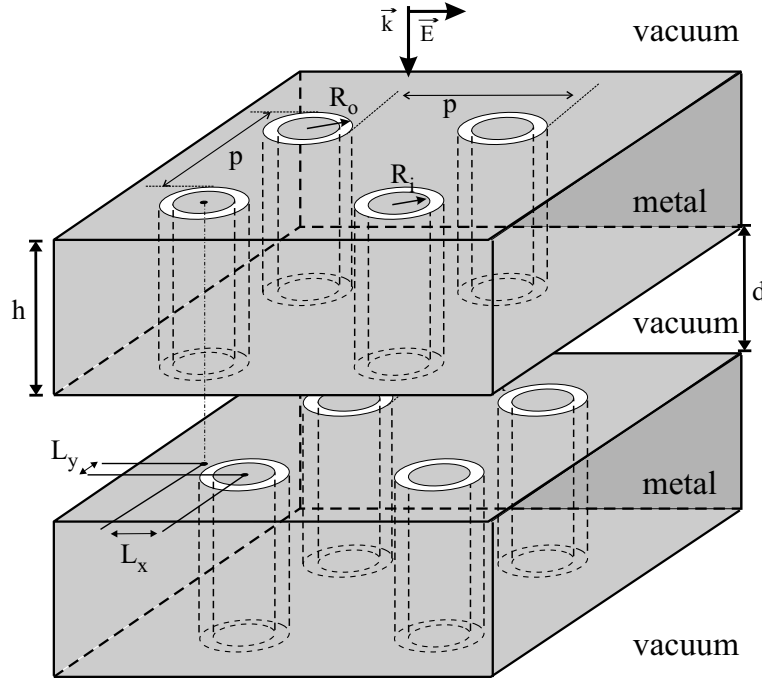


Figure 4.1 – Schéma de la structure étudiée. La période est notée p , les rayons intérieur et extérieur respectivement R_i et R_e et la hauteur de métal h . La distance entre les deux couches métalliques est d . L_x et L_y représentent les décalages latéraux selon les directions x et y . La structure est illuminée par une onde plane sous incidence normale.

La figure 4.2 montre le pic de transmission d'une seule couche métallique suspendue dans le vide.

Le calcul se fait à l'aide du code FDTD développé dans notre équipe et décrit précédemment. Le modèle de Drude permet de prendre en compte la réponse du métal en fonction de la longueur d'onde de la lumière. Pour améliorer la connaissance du champ électromagnétique, le pas spatial δ , dans et autour du métal, dans la direction z est de 5 nm. Ce pas augmente de façon continue dans le reste de la fenêtre de calcul pour atteindre 25 nm. Les pas spatiaux sur les deux autres dimensions (x et y) sont fixes et égaux à 5 nm. De plus, la fenêtre de calcul est entourée de couches PML suivant z afin d'éviter les réflexions du champ électromagnétique sur ses bords lors de sa propagation. Comme indiqué sur figure 4.2, le pic de transmission pour une couche de métal se situe à la longueur d'onde de coupure $\lambda_c^{TE_{11}}$ du mode guidé de la structure coaxiale, ici $\lambda_c^{TE_{11}} = 926,5$ nm. Au-delà de la longueur d'onde de coupure, aucune transmission importante de la lumière

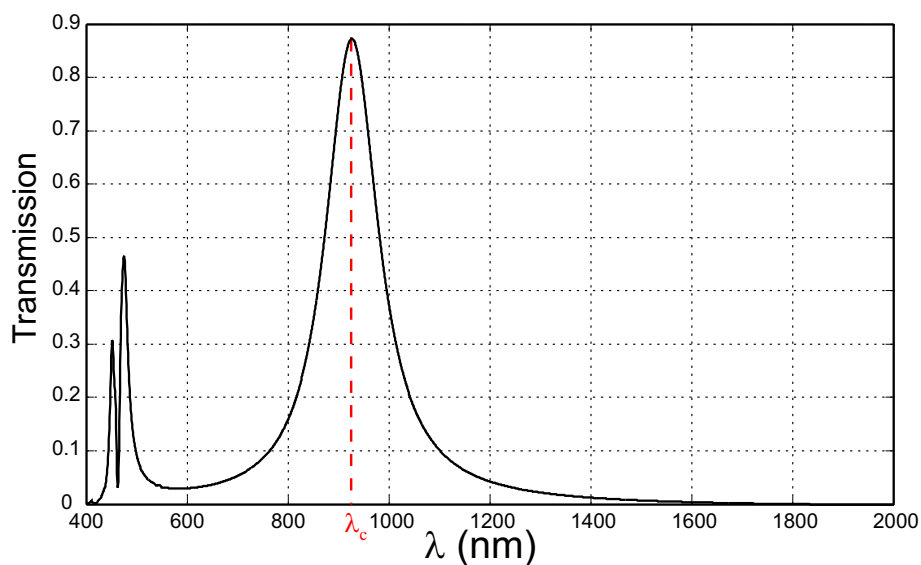


Figure 4.2 – Spectre de transmission d’une couche d’argent nanostructurée avec des structures ayant les paramètres suivants : $p=350$ nm, $R_i=75$ nm, $R_e=100$ nm et $h=100$ nm. La structure est illuminée par une onde plane sous incidence normale.

n’est possible.

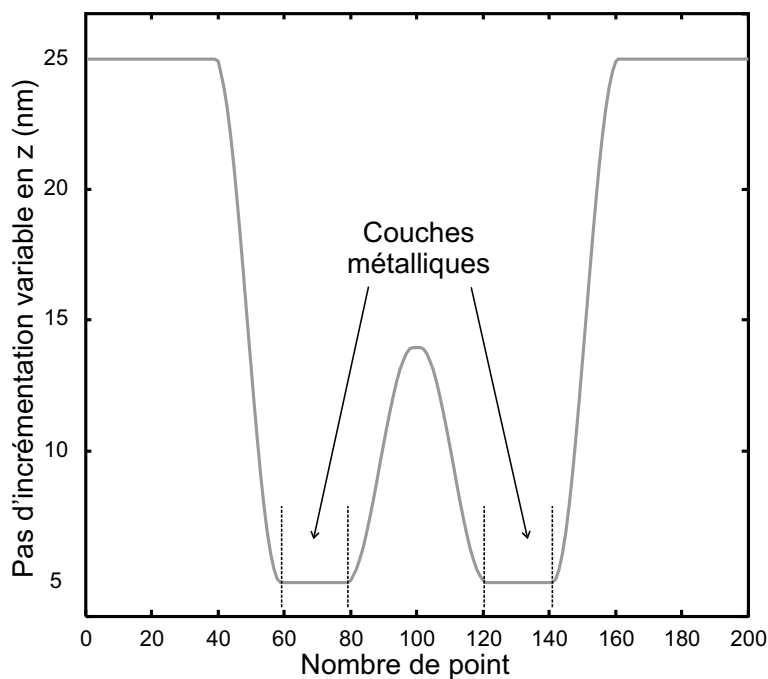


Figure 4.3 – Evolution du pas d’incrément sur la direction z pour permettre une connaissance plus fine de l’évolution du champ électromagnétique autour des couches métalliques.

La structure en bi-couche présentée précédemment nous permet, non seulement, de réaliser une transmission au delà de la longueur d'onde de coupure, mais aussi d'obtenir des pics très fins. Comme l'indique la figure 4.3, le seul changement dans notre code réside dans l'évolution du pas spatial pour tenir compte des deux couches. Les paramètres utilisés pour cette simulation sont ceux utilisés pour une seule couche.

4.2.2 Spectres FDTD

Le résultat de la simulation numérique est donné sur la figure 4.4 pour une distance de 600 nm entre les deux couches. Lorsqu'on analyse la figure 4.4 nous constatons la présence de trois pics. Le pic le plus large est le pic du mode guidé dans l'ouverture annulaire. Il se retrouve à la même position que dans le cas de la structure simple, c'est à dire à $\lambda_c^{TE_{11}} = 926,5$ nm. En effet, la position du mode ne dépend que des données géométriques de l'ouverture et celles-ci sont identiques pour la structure simple et le système bi-couche. La différence se situe dans l'apparition de pics beaucoup plus fins dont certains se situent au-delà de la longueur d'onde de coupure. Ces pics sont dus à la cavité formée par les deux couches métalliques. On se retrouve dans le cas classique d'une cavité Fabry-Pérot.

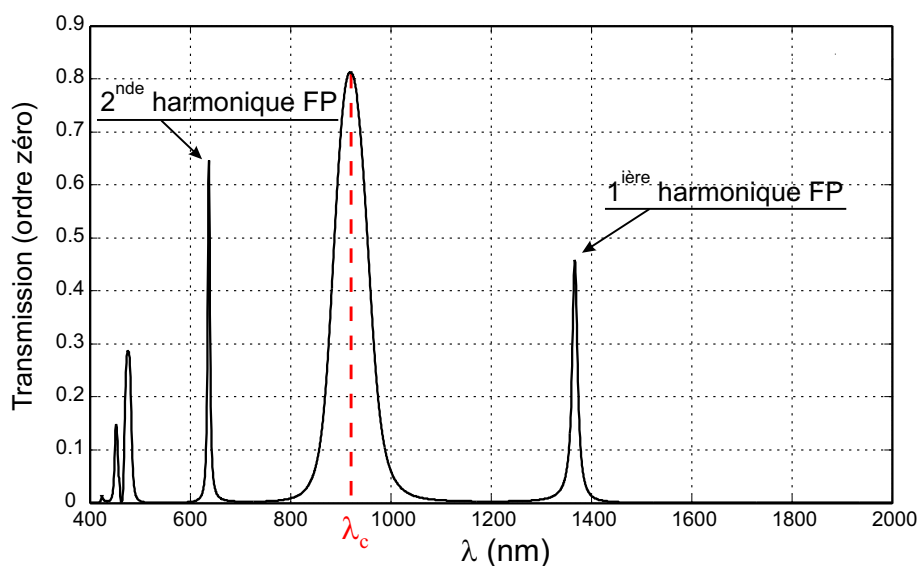


Figure 4.4 – Spectre de transmission de la structure donnée par la figure 4.1 avec les paramètres géométriques de la couche simple de la figure 4.2. La distance d est égale à 600 nm pour cette figure.

Un calcul a été effectué pour plusieurs valeurs de distance d allant de 100 à 600 nm et le résultat est donné sur la figure 4.5.

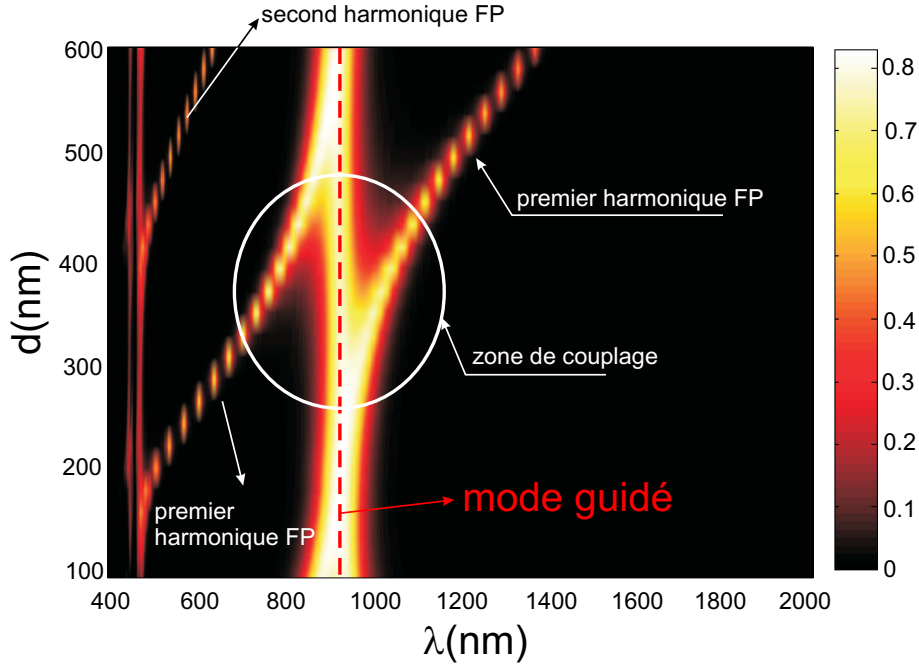


Figure 4.5 – Spectre de transmission de la lumière à travers le système bi-couche en fonction de la distance d entre les couches et la longueur d’onde.

Sur cette figure, le mode guidé à travers la structure persiste à la longueur d’onde de $\lambda_c = 926,5$ nm quelle que soit la distance entre les deux lames. À la longueur d’onde de coupure, l’onde plane interagit très faiblement avec les structures. Cette dernière apparaît, alors, comme transparente et cela quelque soit le nombre de couches cascadiées, à condition d’avoir une distance suffisante entre deux couches consécutives pour éviter les interactions champs proches. En aucun cas, la distance entre les deux lames ne peut modifier le mode qui s’installe dans la cavité. Par contre la longueur d’onde des pics de résonance FP, elle, dépend de la distance entre les deux lames. Enfin, il existe une zone où les deux phénomènes vont se coupler.

On peut comparer les spectres obtenus avec les formules de la cavité FP. La transmission d’une cavité FP classique est fortement dépendante de la distance d entre les deux lames métalliques. Le coefficient de transmission T^{FP} d’un FP est donné par la formule suivante :

$$T^{FP}(\lambda) = \frac{T^2(\lambda)}{[1 - R(\lambda)]^2 + 4R(\lambda) \sin^2(\frac{\phi}{2})} \quad (4.1)$$

dans laquelle :

- $T(\lambda)$ représente le coefficient de transmission d’une couche métallique en fonction

- de la longueur d'onde ;
- $R(\lambda)$ le coefficient de réflexion d'une couche métallique en fonction de la longueur d'onde ;
 - et ϕ le déphasage associé à cette cavité.

Sous incidence normale, ce déphasage s'écrit :

$$\phi = \frac{4\pi ne}{\lambda} \quad (4.2)$$

où n est l'indice du milieu entre les deux lames métalliques (dans notre cas, nous avons du vide donc l'indice du milieu vaut 1) et e est la distance effective entre les deux lames. Cette distance effective est définie comme la somme de la distance d entre les deux couches et de la profondeur de pénétration de l'onde dans la couche métallique e_m :

$$e = d + 2e_m \quad (4.3)$$

Cette épaisseur dépend de la longueur d'onde et s'exprime par la formule suivante :

$$e_m(\lambda) = \frac{\lambda}{2\pi n''(\lambda)} \quad (4.4)$$

où n'' est la partie imaginaire de l'indice optique, qui physiquement représente la faculté d'absorption du métal.

Avant de rentrer dans les détails physiques, parlons un instant de la finesse F représentée sur la figure 4.6. La finesse détermine le pouvoir de résolution d'une cavité FP. Elle s'exprime par la formule suivante :

$$F(\lambda) = \frac{\pi}{2 \arcsin \left(\frac{1-R(\lambda)}{2\sqrt{R(\lambda)}} \right)} \quad (4.5)$$

formule plus connue lorsque l'on prend le développement limité de la fonction arcsin pour $R(\lambda)$ grand :

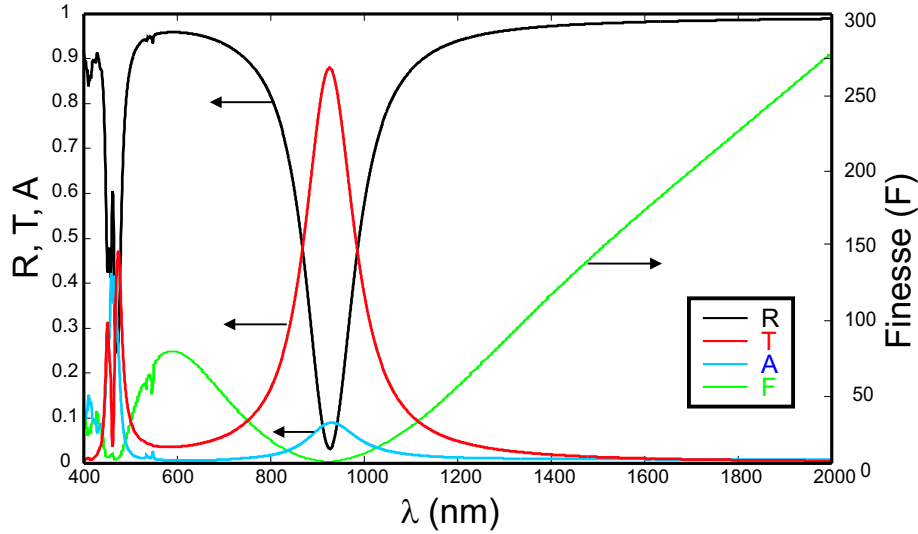


Figure 4.6 – Calcul des coefficients de transmission T en rouge, de réflexion R en noir et d’absorption A en bleu pour une couche en argent de 100 nm d’épaisseur nanostructurée par des structures annulaires avec les paramètres géométriques de la figure 4.2. La finesse F de la double couche est tracée en vert.

$$F(\lambda) = \frac{\pi\sqrt{R(\lambda)}}{1 - R(\lambda)} \quad (4.6)$$

Plus la finesse va être importante, plus les pics de résonance de la cavité vont être fins et plus la résolution de cette cavité sera importante. Il semble naturel d’utiliser ces cavités comme filtre pour des valeurs de finesse supérieure à 250. Notons que la finesse est nulle pour la longueur d’onde de coupure du mode guidée puisque, dans ce cas, la notion de cavité n’existe plus.

Connaissant la courbe de transmission et celle de réflexion d’une couche simple par notre code FDTD, il est assez facile de remonter aux coefficients de transmission T et de réflexion R de la couche en argent (voir figure 4.6). Le coefficient T est donné directement par la courbe de transmission pour une seule couche de la figure 4.2. Le coefficient d’absorption A est obtenu en utilisant la conservation de l’énergie. Remarquons que l’absorption A est négligeable sauf autour de la longueur d’onde de coupure du mode TE_{11} comme l’indique la figure 4.5.

À partir de toutes ces données, on peut tracer le coefficient de transmission T^{FP} de notre système double couche en utilisant la formule 4.1 et des données de la figure 4.6. Le résultat est donné sur la figure 4.7. Cette figure tient compte, naturellement, de la

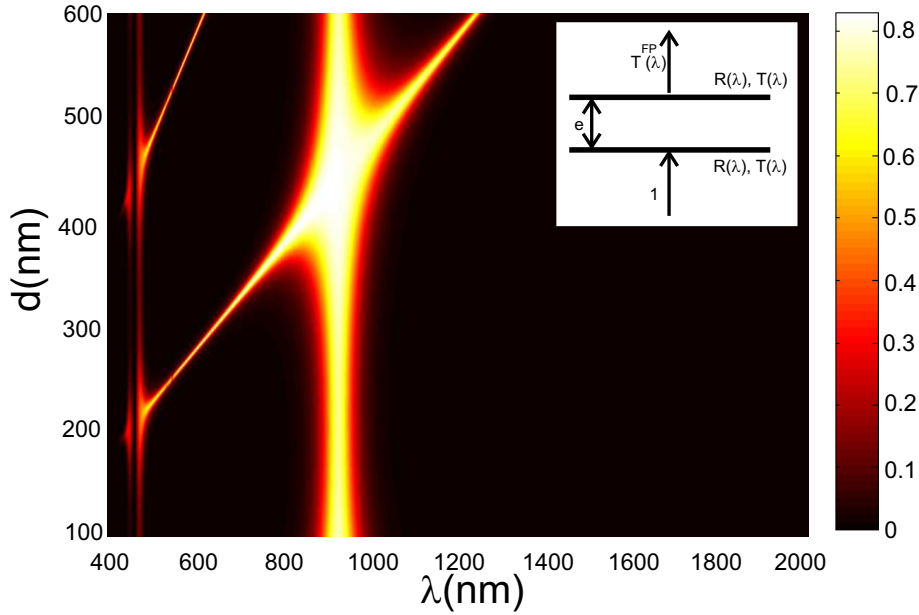


Figure 4.7 – Spectre de transmission T^{FP} calculé en fonction de la distance d entre les deux couches et de la longueur d'onde avec la formule analytique 4.1. La distance effective e indiquée tient compte de la distance d entre les deux couches de métal ainsi que de la profondeur de peau e_m dans la couche métallique : $e = d + 2e_m$.

distance d entre les deux couches et de la pénétration de l'onde dans le métal ou épaisseur de peau e_m .

Lorsque l'on compare les figures 4.5 et 4.7, on remarque que la transmission du mode guidé se fait à la même longueur d'onde et que les pics de transmission dus à la cavité FP apparaissent également. Par contre, on note une différence importante : le couplage ne se situe pas à la même valeur de distance d entre les deux couches métalliques ($d \sim 380$ - 390 nm pour la figure 4.5 ; $d \sim 440$ - 450 nm pour la figure 4.7).

À quoi peut-on attribuer cette différence ? L'explication que l'on donne provient de la structuration de nos couches métalliques. La distance effective e entre les deux couches n'est pas seulement la somme entre d et $2e_m$ mais doit faire apparaître un facteur géométrique dû à la présence des cavités annulaires dans les couches métalliques, facteur que l'on note e_g . Ainsi, la distance effective qui intervient dans le déphasage donné par l'équation 4.2 s'écrit :

$$e(\lambda) = d + 2e_m(\lambda) + 2e_g(\lambda) \quad (4.7)$$

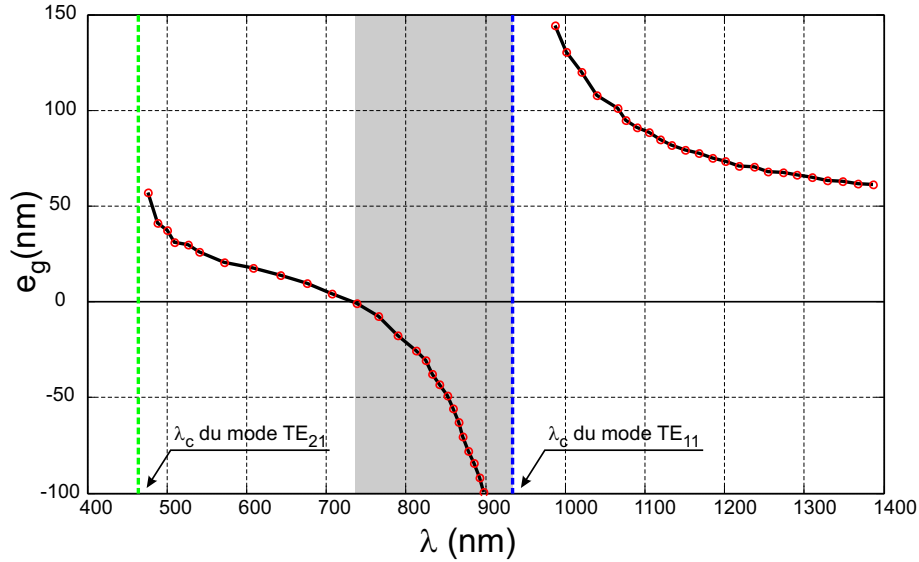


Figure 4.8 – Evolution du facteur géométrique e_g en fonction de la longueur d’onde pour une seule couche de métal. La zone grisée indique la zone de longueur d’onde où le facteur prend une valeur négative.

Il est important de noter que ce facteur géométrique peut être différent de zéro même pour des longueurs d’onde différentes de la longueur d’onde de coupure.

La différence entre les deux courbes nous permet de connaître l’évolution de ce facteur géométrique (figure 4.8). Notons dans un premier temps que e_g n’est pas défini pour les valeurs de longueurs d’onde coupure λ_c . La partie droite de la courbe ($\lambda > \lambda_c^{TE_{11}}$) semble décroître de manière exponentielle. La zone grisée de la courbe indique que ce facteur peut être négatif. Cela vient du fait que, lorsque l’on s’approche de la zone du mode guidé, l’indice effectif peut être plus petit que 1 [100].

4.3 Tamis à photons et génération de second harmonique

Grâce aux progrès effectués sur les lasers de puissance, les effets non-linéaires des interactions matière-rayonnement ont pu être mis en évidence. De plus en plus de travaux

portent sur les effets non-linéaires de la transmission de la lumière à travers des films métalliques percés d'ouvertures sub-longueurs d'onde. La génération de second harmonique (GSH) a déjà été démontrée et observée pour de nombreuses géométries d'ouverture [121, 122, 123, 124, 125, 126]. L'intérêt de cette recherche porte sur les applications importantes en vue de l'intégration de fonctionnalités pour le traitement du signal par des composants nano-optiques. La GSH a été également produite avec des ouvertures annulaires sur un substrat d'arsénure de gallium (GaAs) [127]. Ce résultat combine les propriétés non-linéaires de l'arsénure avec les capacités de forte transmission des ouvertures annulaires creusées dans une couche d'or. Cette idée, nous souhaiterions la réaliser avec un autre matériau électro-optique possédant de fortes propriétés non-linéaires : le niobate de lithium. Comme l'indique la figure 4.9, l'idée consiste à l'utiliser à la fois comme substrat et comme diélectrique entre les parois métalliques de la cavité annulaire.

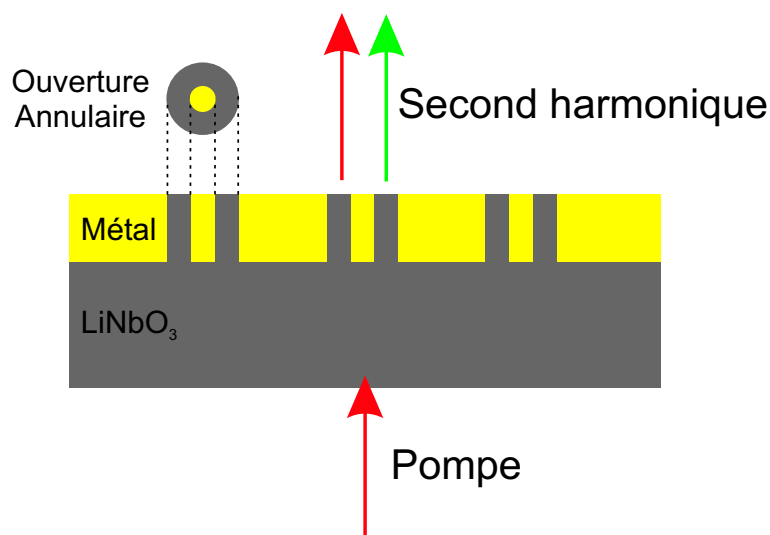


Figure 4.9 – Schéma de principe pour l'obtention d'une génération de second harmonique avec un substrat de niobate de lithium.

La génération de second harmonique est un processus d'optique non-linéaire dans lequel des photons interagissent avec un milieu non-linéaire pour former des photons d'énergie double. Généralement, il est nécessaire d'avoir un accord de phase pour obtenir un taux significatif de conversion des photons. Dans le cas de nos faibles épaisseurs (de l'ordre d'une centaine de nanomètres), l'accord de phase n'est pas nécessaire pour générer une conversion significative car l'interaction se fait sur une distance plus courte que la longueur d'onde. La génération de second harmonique est alors créée de façon spontanée par l'exaltation de champ et par le matériau non-linéaire dans la cavité. Si la longueur d'onde de la génération de second harmonique correspond à la longueur d'onde du mode

de cavité, alors le taux de conversion peut devenir optimum, et ainsi, obtenir un faisceau de fréquence double.

4.4 Exaltation de champ pour l'étude de la fluorescence

La fluorescence est la propriété de certains corps d'émettre un rayonnement à une longueur d'onde λ_1 lorsqu'ils sont soumis à une excitation lumineuse à une autre longueur d'onde λ_2 . Chaque particule fluorescente ou fluorophore possède des spectres propres d'absorption et d'émission. L'utilisation d'ouverture sub-longueur d'onde comme source d'excitation permet d'augmenter le niveau de fluorescence détecté en raison de l'exaltation du champ existant dans les trous [128, 129, 130]. Les récentes expériences menées à l'Institut Fresnel sont conçues de telle façon que seules les molécules situées dans les ouvertures - circulaires dans ce cas - contribuent au signal de fluorescence détecté. Des études théoriques [131] basées sur le calcul de densité moyenne d'exaltation dans les trous (formule empruntée à la microscopie confocale de fluorescence) montrent un bon accord avec les résultats expérimentaux obtenus. La densité moyenne d'exaltation est donnée par la formule suivante :

$$\eta = \frac{\int \int \int |E|^4 dV}{\int \int \int |E|^2 dV}$$

où les intégrales portent sur le volume de l'ouverture dans la couche métallique. Nous avons alors entrepris des calculs similaires par FDTD dans le cas d'ouvertures annulaires. Les premiers résultats, présentés sur la figure 4.10, montrent qu'une ouverture coaxiale permet une meilleure exaltation de la fluorescence qu'une simple ouverture circulaire (facteur 10). Il suffit alors d'adapter la géométrie afin d'avoir un bon recouvrement entre le spectre d'exaltation d'un côté, et les spectres d'absorption et d'émission des molécules fluorescentes de l'autre côté.

4.5 Transmission exaltée par le mode TEM

Dans le contexte de la transmission exaltée, le mode TEM, transverse électrique et magnétique, est intéressant. Ce mode de cavité ne possède pas de longueur d'onde de

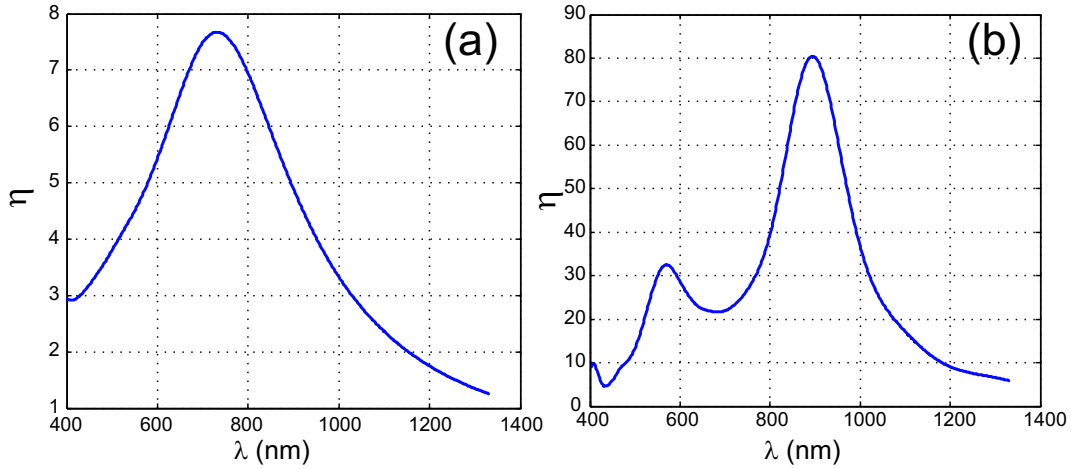


Figure 4.10 – Calcul de densité moyenne d'exaltation dans une couche d'argent de 150 nm d'épaisseur sur un substrat de verre : (a) pour une ouverture circulaire de diamètre 200 nm, (b) pour une ouverture annulaire de diamètre intérieur 100 nm et de diamètre extérieur 200 nm. Un film d'eau est placé sur la structure.

coupure et la transmission peut se faire pour toutes les longueurs d'onde. Rappelons que ce mode ne peut exister dans une structure simplement connexe comme une ouverture circulaire. Il faut une structure doublement connexe comme notre cavité annulaire pour arriver à l'observer.

Baida a montré que le recouvrement d'une onde plane incidente avec le mode TEM est non nul dans le cas d'une incidence oblique et d'une polarisation TM [83]. Ce mode ne sera excité que lorsque les deux conditions seront remplies comme le montre la figure 4.11. Pour cette figure, la structure modélisée consiste en un réseau de période p fait dans un film de métal parfait d'épaisseur $2p$ dans lequel des ouvertures annulaires de rayon intérieur $\frac{p}{4}$ et de rayon extérieur $\frac{p}{3}$ ont été percées. Comme prévu, le pic TEM apparaît seulement en polarisation TM entre $\lambda = 4,5p$ et $5p$. Ceci correspond bien à une structure sub-longueur d'onde. La position du pic est gouvernée par une condition d'accord de phase de la cavité Fabry-Pérot formée par les faces de sortie et d'entrée de la cavité ouverte. La hauteur du pic augmente lorsque l'angle d'incidence θ augmente car le recouvrement devient meilleur. L'intérêt de l'excitation du mode guidé TEM de la cavité réside dans le fait que la position de la longueur d'onde de transmission ne dépend que de l'épaisseur de la couche et que cette longueur d'onde peut être bien plus grande que la longueur d'onde de coupure du mode TE_{11} .

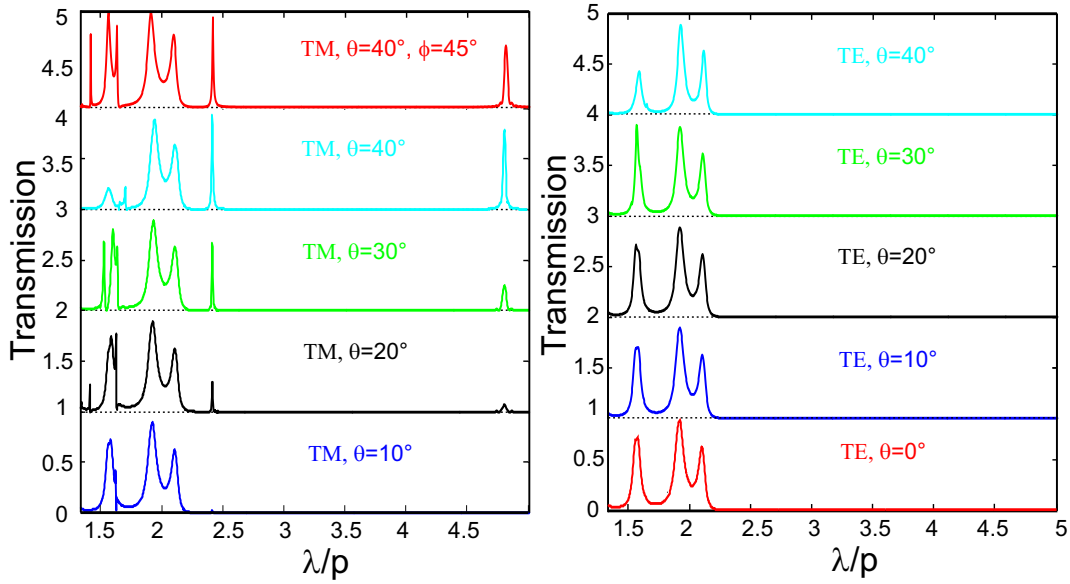


Figure 4.11 – Excitation du mode TEM de la cavité réalisée dans une couche de métal parfait : étude de l’influence de la polarisation et de l’angle d’incidence du faisceau d’illumination de la structure. Pour une meilleure lisibilité, les spectres sont décalés de 1 unité entre eux. (a) : spectres de transmission pour une onde d’illumination polarisée TM pour 5 valeurs d’angle d’incidence, (b) : spectres de transmission pour une onde d’illumination polarisée TE pour 5 valeurs d’angle d’incidence. θ représente l’angle d’incidence de la lumière, ϕ l’angle azimutal.

4.6 Conclusion

Nous avons montré quelques idées pour des applications basées sur des tamis à ouvertures annulaires. La structure en double couche permet de dépasser et de transmettre au-delà de la longueur d’onde de coupure du mode guidé responsable de la forte transmission. De plus, il n’existe aucune contrainte technologique sur l’alignement des deux couches lorsque ces dernières ne sont pas couplées en champ proche. Les pics de transmission obtenus sont alors très fins, on peut véritablement parler de filtres spectraux. La position des pics peut être commandée soit par une modification d’indice du milieu intermédiaire (effet électro-optique), soit par changement de l’écart entre les deux couches (effet piézo-électrique). Le niobate de lithium est un matériau bien adapté à ces applications via ces larges propriétés optiques. Il nous permettrait également la génération d’un second harmonique exaltée par la cavité annulaire. Placée à la longueur d’onde du mode de cavité, le taux de conversion deviendrait significatif. Les applications en nano-photonique de ces perspectives sont évidentes. L’impact, sur la fluorescence, de l’exaltation du champ dans

les cavités annulaires reste à optimiser en fonction de la géométrie. Les premiers résultats théoriques sont prometteurs. Enfin, la perspective la plus ambitieuse reste l'excitation du mode TEM de la cavité. Celui-ci présente, comme pour la double couche métallique, des propriétés évidentes de filtrage spectral.

Les possibilités d'applications basées sur l'utilisation de tamis à ouvertures annulaires que nous venons de citer sont loin d'être exhaustives. En effet, la plupart de leurs propriétés restent valables dans d'autres domaines du spectre électromagnétique. Ainsi, des applications en micro-ondes [132], en terahertz [133, 134] ou en infra-rouge [77, 135] sont actuellement développées. En tout cas, l'une des propriétés les plus importantes qui a été démontrée sur le plan théorique et qui reste à valider expérimentalement concerne la robustesse de cette structure vis-à-vis des conditions de l'éclairage. En effet, il a été démontré [103] que le spectre de transmission d'un tel tamis à photon est quasi indépendant de l'angle d'incidence et de la polarisation de l'illumination. Il s'agit là d'une propriété très importante qui pourra être utilisée aussi bien dans le domaine photovoltaïque que dans les domaines militaire et civil pour fabriquer des radômes ou des caches pour les paraboles de réception de satellite.

Conclusion Générale

Ce travail de thèse s'inscrit dans le domaine des nanosciences et des nanotechnologies. Depuis la prémonition de Feynmann en 1959, celles-ci n'ont cessé de se développer au point de devenir un enjeu commercial important. Les progrès technologiques permettent de fabriquer rapidement et en grand nombre des structures de plus en plus miniaturisées. Cette thèse est une partie infime de ces larges domaines. Elle contribue à la connaissance des phénomènes qui régissent la transmission exaltée à travers des ouvertures sub-longueurs d'onde percées dans un film métallique opaque, appelées également tamis à photons. L'originalité de cette thèse est d'étudier des ouvertures de géométrie annulaire. Cette géométrie apporte des propriétés et des avantages non négligeables pour la transmission de la lumière. Dans un premier temps, la transmission lumineuse à travers les films métalliques nanostructurés par ce type d'ouvertures atteint des niveaux excessivement élevés par rapport à la transmission exaltée basée sur la résonance plasmon. L'explication de cette forte transmission réside dans la présence des modes guidés par la cavité annulaire. La transmission se situe à la longueur d'onde de coupure du mode de la cavité. Les modes guidés sont également présents dans des cavités à ouvertures circulaires avec des transmissions importantes. Mais ceux-ci ont généralement une longueur d'onde de coupure très faible ne dépassant pas les 500 nm. Le deuxième avantage de la forme annulaire est d'augmenter la valeur de la longueur d'onde de coupure du mode. Par conséquent, elle permet la forte transmission de la lumière à des longueurs d'onde plus grandes, en particulier dans celles du visible. Un choix judicieux des valeurs des diamètres intérieur et extérieur de l'anneau nous permet de contrôler la position de la longueur d'onde de coupure et donc de la longueur d'onde de transmission à travers nos films métalliques opaques.

L'interprétation de simulations numériques nous a permis de connaître ces propriétés. Ces simulations sont obtenues grâce à un code développé dans notre équipe et basé sur la résolution des équations de Maxwell par la méthode des différences finies dans le domaine

temporel (FDTD). Le temps et l'espace y sont discrétisés et les dérivées partielles sont remplacées par des différences finies. L'algorithme de Yee est utilisé pour le maillage spatial et temporel de la fenêtre de calcul. Cet algorithme est excessivement robuste car il permet de calculer simultanément les champs électrique et magnétique. Les propriétés diélectriques des métaux sont intégrées dans le code par l'intermédiaire de modèles de dispersion : celui de Drude dans le cas de l'argent, celui de Drude-Lorentz pour l'or avec la méthode dite des accumulateurs récursifs. Ce code intègre également un maillage adaptatif pour diminuer le temps de calcul, la mémoire utilisée et pour affiner la connaissance du champ électromagnétique autour des zones particulières que sont les couches de métal nanostructurées. Enfin, la mise en place de couches PML autour de la fenêtre de calcul évite la réflexion d'ondes homogènes qui fausserait le calcul.

De nombreuses expériences sont venues compléter et valider ce travail théorique. Dans un premier temps, ces simulations nous ont permis de déterminer des paramètres géométriques technologiquement réalisables et offrant une transmission élevée. Un grand nombre de structures ont ainsi pu être fabriquées soit par lithographie e-beam, soit par gravure ionique, à la centrale technologique MIMENTO et à l'EPFL lors de notre collaboration avec l'équipe de Patrik Hoffmann. Les ouvertures annulaires nanométriques ont ensuite été caractérisées en microscopie optique en champ proche en mode réflexion et en mode transmission. La caractérisation en mode réflexion a mis en évidence la structure du champ électrique à la surface de la couche métallique. Cette distribution expérimentale en « grain de café » correspond à la structure spatiale théorique du champ calculé à l'aide de notre code FDTD. Ce travail a permis de montrer l'existence du mode guidé TE_{11} dans les cavités annulaires. En mode transmission, une étude en fonction de la longueur d'onde et de la polarisation a été menée pour la première fois sur ce type de géométrie. Les structures en « grain de café » n'ont pas été mises en évidence lors de cette étude du fait d'un manque de résolution ; beaucoup de travail reste à faire sur ce point. Enfin, l'étude spectrale expérimentale de matrices d'ouvertures annulaires creusées dans une couche d'argent opaque a confirmé le fort potentiel de transmission prévu par la théorie. En effet, pour la première fois à notre connaissance, une transmission de 90% a été atteinte dans la partie visible du spectre lumineux et cela pour plusieurs matrices. Ce résultat représente l'aboutissement de ce travail de thèse.

Du point de vue des perspectives théoriques, la compétition ou la combinaison des modes guidés et de la résonance plasmon restent à étudier et permettraient peut-être d'optimiser ces transmissions exaltées. Dans ce cadre, des calculs complémentaires doivent être

menés sur l'influence du substrat et des paramètres géométriques de la structure annulaire. Les perspectives expérimentales proposées dans le dernier chapitre de ce manuscrit se déclinent à court et à long terme. En particulier, la fabrication d'une double structure est technologiquement réalisable du fait que les structures n'ont pas besoin d'être verticalement alignées pour obtenir un fin pic de transmission au-delà de la longueur d'onde de coupure. De plus, l'intégration de ces tamis à photons sur un substrat de niobate de lithium, matériau non-linéaire et électro-optique, permettrait d'une part de générer significativement un second harmonique sans accord de phase et, d'autre part de commander les pics de transmission en changeant l'indice optique à l'aide d'une tension.

En conclusion, les tamis à photons à ouvertures annulaires nanométriques montrent, à travers ces perspectives, leur intérêt fondamental pour les nanosciences et leurs nombreuses applications potentielles : fluorescence, lithographie, filtres, nano-composants optiques commandables, microscopie, écrans plats... Une société¹ commercialise déjà des tamis à photons constitués de trous circulaires dans un film d'or sur une surface de 4 mm par 4 mm. Ceux-ci offrent une solution unique pour l'analyse et l'identification par spectroscopie Raman (*Surface Enhanced Raman Scattering*) : la société revendique ainsi une très forte exaltation du signal Raman. Un tamis à photons à ouvertures annulaires pourrait dans ce cas concurrencer cette matrice de trous circulaires et être une alternative plus qu'intéressante.

¹www.mesophotonics.com

Bibliographie

- [1] S. IJIMA, « Helical microtubules of graphitic carbon, » *Nature*, **354**, pp. 56–58 (1991).
 - [2] M. WAUTELET ET COLL., *Les nanotechnologies* (Dunod) (2003).
 - [3] D.M. EIGLER et E.K. SCHWEIZER, « Positioning single atoms with a scanning tunneling microscope, » *Nature*, **344**, pp. 524–526 (1990).
 - [4] H.A. BETHE, « Theory of diffraction by small holes, » *Phys. Rev.*, **66**, no. 7, pp. 163–182 (1944).
 - [5] T. W. EBBESEN, H. J. LEZEC, H. F. GHAEMI, T. THIO et P. A. WOLFF, « Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays, » *Nature*, **391**, pp. 667–669 (1998).
 - [6] D.K. GIFFORD et D.G. HALL, « Emission through one of two metal electrodes of an organic light-emitting diode via surface-plasmon cross coupling, » *Appl. Phys. Lett.*, **81**, no. 23, pp. 4315–4317 (2002).
 - [7] S. SHINADA, J. HASHIZUME et F. KOYAMA, « Surface plasmon resonance on microaperture vertical-cavity surface-emitting laser with metal grating, » *Appl. Phys. Lett.*, **83**, no. 5, pp. 836–838 (2003).
 - [8] M.M. ALKAISI, R.J. BLAIKIE, S.J. MCNAB, R. CHEUNG et D.R.S. CUMMING, « Sub-diffraction-limited patterning using evanescent near-field optical lithography, » *Appl. Phys. Lett.*, **75**, no. 22, pp. 3560–3562 (1999).
 - [9] X. LUO et T. ISHIHARA, « Subwavelength photolithography based on surface-plasmon polariton resonance, » *Opt. Express*, **12**, no. 14, pp. 3055–3065 (2004).
 - [10] Y. LIU et S. BLAIR, « Fluorescence enhancement from an array of subwavelength metal apertures, » *Opt. Lett.*, **28**, no. 7, pp. 507–509 (2003).
 - [11] S.H. GARRETT, L.H. SMITH et W.L. BARNES, « Fluorescence in the presence of metallic hole arrays, » *J. Mod. Opt.*, **52**, no. 8, pp. 1105–1122 (2005).
-

-
- [12] A.G. BROLO, R. GORDON, B. LEATHEM et K.L. KAVANAGH, « Surface plasmon sensor based on the enhanced light transmission through arrays of nanoholes in gold films, » *Langmuir*, **20**, pp. 4813–4815 (2004).
- [13] F.I. BAIDA et D. VAN LABEKE, « Light transmission by subwavelength annular aperture arrays in metallic films, » *Opt. Commun.*, **209**, pp. 17–22 (August 2002).
- [14] F.I. BAIDA et D. VAN LABEKE, « Three-dimensional structures for enhanced transmission through a metallic film : annular aperture arrays, » *Phys. Rev. B*, **67**, pp. 155314 1–7 (2003).
- [15] C. J. BOUWKAMP, « Diffraction theory, » *Rep. Prog. Phys.*, **27**, pp. 35–100 (1954).
- [16] R. ULRICH, « Far-infrared properties of metallic mesh and its complementary structure, » *Infrared Physics*, **7**, pp. 37–55 (1967).
- [17] R.C. COMPTON, R.C. MCPHEDRAN, G.H. DERRICK et L.C. BOTTEN, « Diffraction properties of a bandpass grid, » *Infrared Physics*, **23**, no. 5, pp. 239–245 (1983).
- [18] J.C.C. FAN, F.J. BACHNER et R.A. MURPHY, « Thin-film conducting microgrids as transparent heat mirrors, » *Appl. Phys. Lett.*, **28**, no. 8, pp. 440–442 (1976).
- [19] M.M.J. TREACY, « Dynamical diffraction in metallic optical gratings, » *Appl. Phys. Lett.*, **75**, no. 5, pp. 606–608 (1999).
- [20] R.W. WOOD, « On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum, » *Philosophical Magazine*, **4**, pp. 396–402 (1902).
- [21] U. FANO, « The theory of anomalous diffraction gratings and quasi-stationary waves on metallic surfaces (sommerfeld's waves), » *J. Opt. Soc. Am.*, **31**, no. 3, pp. 213–222 (1941).
- [22] A. OTTO, « Excitation of the non-radiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection, » *Z. Phys.*, **216**, pp. 398–410 (1968).
- [23] E. KRETSCHMANN et H. RAETHER, « Radiative decay of the non-radiative surface plasmons excited by light, » *Z. Naturforsch*, **23**, pp. 2135–2136 (1968).
- [24] A.V. ZAYATS, I.I. SMOLYANINOV et A.A. MARADUDIN, « Nano-optics of surface plasmon polaritons, » *Phys. Rep.*, **408**, pp. 131–314 (2005).
- [25] J. HOMOLA, S.S. YEE et G. GAUGLITZ, « Surface plasmon resonance sensors : reviews, » *Sensors and actuators B*, **54**, pp. 3–15 (1999).
- [26] A.C.R. PIPINO, J.T. WOODWARD, C.W. MEUSE et V. SILIN, « Surface-plasmon-resonance-enhanced cavity ring-down detection, » *J. Chem. Phys.*, **120**, no. 3, pp. 1585–1593 (2004).
-

-
- [27] U.C. FISCHER, « Submicrometer aperture in a thin metal film as a probe of its microenvironment through enhanced light scattering and fluorescence, » *J. Opt. Soc. Am. B*, **3**, no. 10, pp. 1239–1244 (1986).
- [28] J.R. KRENN, J-C. WEEBER, A. DEREUX, E. BOURILLOT, J-P. GOUDONNET, B. SCHIDER, A. LEITNER, F.R. AUSSENEGG et C. GIRARD, « Direct observation of localized surface plasmon coupling, » *Phys. Rev. B*, **60**, no. 7, pp. 5029–5033 (1999).
- [29] L. SALOMON, F. GRILLOT, A.V. ZAYATS et F. DE FORNEL, « Near-field distribution of optical transmission of periodic subwavelength holes in a metal film, » *Phys. Rev. Lett.*, **86**, no. 6, pp. 1110–1113 (2001).
- [30] S. COLLIN, F. PARDO et J-L. PELOUARD, « Resonant-cavity-enhanced subwavelength metal-semiconductor-metal photodetector, » *Appl. Phys. Lett.*, **83**, no. 8, pp. 1521–1523 (2003).
- [31] T. NIKOLAJSEN, K. LEOSSEN et S.I. BOZHEVOLNYI, « In-line extinction modulator based on long-range surface plasmon polaritons, » *Opt. Commun.*, **244**, pp. 455–459, application des plasmons : modulateur (2005).
- [32] W. SRITURAVANICH, N. FANG, C. SUN, Q. LUO et X. ZHANG, « Plasmonic nanolithography, » *Nano Lett.*, **4**, no. 6, pp. 1085–1088 (2004).
- [33] H. RAETHER, *Surface Plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings*, tome 111 (Springer, Berlin) (1988).
- [34] D. GÉRARD, L. SALOMON, F. DE FORNEL et A.V. ZAYATS, « Analysis of the bloch mode spectra of surface polaritonic crystals in the weak and strong coupling regimes : gratings-enhanced transmission at oblique incidence and suppression of spp radiation losses, » *Opt. Express*, **12**, no. 16, pp. 3652–3663 (2004).
- [35] B. BAI, L. LI et L. ZENG, « Experimental verification of enhanced transmission through two-dimensionnaly corrugated metallic films without holes, » *Opt. Lett.*, **30**, no. 18, pp. 2360–2362 (2005).
- [36] R.H. RITCHIE, E.T. ARAKAWA, J.J. COWAN et R.N. HAMM, « Surface-plasmon resonance effect in grating diffraction, » *Phys. Rev. Lett.*, **21**, no. 22, pp. 1530–1533 (1968).
- [37] U. SCHRÖTER et D. HEITMANN, « Surface-plasmon-enhanced transmission through metallic gratings, » *Phys. Rev. B*, **58**, no. 23, pp. 15419–15421, simulation champ lointain et champ proche de l'effet de transmission exaltée (December 1998).
-

-
- [38] J.A. PORTO, F.J. GARCIA-VIDAL et J.B. PENDRY, « Transmission resonances on metallic gratings with very narrow slits, » *Phys. Rev. Lett.*, **83**, no. 14, pp. 2845–2848 (1999).
- [39] D.E. GRUPP, H.J. LEZEC, T.W. EBBESEN, K.M. PELLERIN et T. THIO, « Crucial role of metal surface in enhanced transmission through subwavelength apertures, » *Appl. Phys. Lett.*, **77**, no. 11, pp. 1569–1571 (September 2000).
- [40] S. COLLIN, F. PARDO, R. TEISSIER et J-L. PELOUARD, « Horizontal and vertical surface resonances in transmission metallic gratings, » *J. Opt. A : Pure Appl. Opt.*, **4**, pp. S154–S160 (2002).
- [41] Y. XIE, A.R. ZAKHARIAN, J.V. MOLONEY et M. MANSURIPUR, « Transmission of light through a periodic array of slits in a thick metallic film, » *Opt. Express*, **13**, no. 12, pp. 4485–4491 (2005).
- [42] H.F. GHAEMI, T. THIO, D.E. GRUPP, T.W. EBBESEN et H.J. LEZEC, « Surface plasmons enhance optical transmission through subwavelength holes, » *Phys. Rev. B*, **58**, no. 11, pp. 6779–6782 (1998).
- [43] T. THIO, H.F. GHAEMI, H.J. LEZEC, P.A. WOLFF et T.W. EBBESEN, « Surface-plasmon-enhanced transmission through hole arrays in cr films, » *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, pp. 1743–1748 (1999).
- [44] L. MARTIN-MORENO, F.J. GARCIA-VIDAL, H.J. LEZEC, K.M. PELLERIN, T. THIO, J.B. PENDRY et T.W. EBBESEN, « Theory of extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays, » *Phys. Rev. Lett.*, **86**, no. 6, pp. 1114–1117 (February 2001).
- [45] A. DEGIRON, H.J. LEZEC, W.L. BARNES et T.W. EBBESEN, « Effects of hole depth on enhanced light transmission through subwavelength hole arrays, » *Appl. Phys. Lett.*, **81**, no. 23, pp. 4327–4329, influence de l'épaisseur, ne sert à rien (December 2002).
- [46] K.J. KLEIN KOERKAMP, S. ENOCH, F.B. SEGERINK, N.F. VAN HULST et L. KUIPERS, « Strong influence of hole shape on extraordinary transmission through periodic arrays of subwavelength holes, » *Phys. Rev. Lett.*, **92**, no. 18, pp. 183901 1–4, influence de la taille (diamètre des trous) (May 2004).
- [47] J. VUCKOVIC, M. LONCAR, A. et A. SCHERER, « Surface plasmon enhanced light-emitting diode, » *IEEE J. Quantum Electron.*, **36**, no. 10, pp. 1131–1144, DEL avec des plasmons (2000).
- [48] J.A. MATTEO, D.P. FROMM, Y.YUEN, P.J. SCHUCK, W.E. MOERNER et L. HESSELINK, « Spectral analysis of strongly enhanced visible light transmission
-

- through single c-shaped nanoapertures, » *Appl. Phys. Lett.*, **85**, no. 4, pp. 648–650, caractérisation de structures en or (forme de C) (2004).
- [49] Q. WANG, J. LI, C. HUANG, C. ZHANG et Y. ZHU, « Enhanced optical transmission through metal films with rotation-symmetrical hole arrays, » *Appl. Phys. Lett.*, **87**, pp. 091105 (2005).
- [50] A. MEHTA, R.C. RUMPF, Z. ROTH et E.G. JOHNSON, « Nanofabrication of a space-variant optical transmission filter, » *Opt. Lett.*, **31**, no. 19, pp. 2903–2905 (October 2006).
- [51] T. THIO, K.M. PELLERIN, R.A. LINKE, H.J. LEZEC et T.W. EBBESEN, « Enhanced light transmission through a single subwavelength aperture, » *Opt. Lett.*, **26**, no. 24, pp. 1972–1974 (December 2001).
- [52] H.J. LEZEC, A. DEGIRON, E. DEVAUX, R.A. LINKE, L. MARTIN-MORENO, F.J. GARCIA-VIDAL et T.W. EBBESEN, « Beaming light from a subwavelength aperture, » *Science*, **297**, pp. 820–822 (2002).
- [53] C-K. CHANG, D-Z. LIN, C-S. YEH, C-K. LEE, Y-C. CHANG, M-W. LIN, J-T. YEH et J-M. LIU, « Experimental analysis of surface plasmon behavior in metallic circular slits, » *Appl. Phys. Lett.*, **90**, pp. 061113 (2007).
- [54] T. THIO, H.J. LEZEC et T.W. EBBESEN, « Strongly enhanced optical transmission through subwavelength holes in metal films, » *Physica B*, **279**, pp. 90–93 (2000).
- [55] S.-H. CHANG, S.K. GRAY et G.C. SCHATZ, « Surface plasmon generation and light transmission by isolated nanoholes and arrays of nanoholes in thin metal films, » *Opt. Express*, **13**, no. 8, pp. 3150–3165 (2005).
- [56] L. YIN, V.K. VLASKO-VLASOV, A. RYDH, J. PEARSON, U. WELP, S-H. CHANG, S.K. GRAY, G.C. SCHATZ, D.B. BROWN et C.W. KIMBALL, « Surface plasmons at single nanoholes in au films, » *Appl. Phys. Lett.*, **85**, no. 3, pp. 467–469 (2004).
- [57] Y. EKINCI, H.H. SOLAK et C. DAVID, « Extraordinary optical transmission in the ultraviolet region through aluminium hole arrays, » *Opt. Lett.*, **32**, no. 2, pp. 172–174 (2007).
- [58] S.M. WILLIAMS, A.D. STAFFORD, T.M. ROGERS, S.R. BISHOP et J.V. COE, « Extraordinary infrared transmission of cu-coated arrays with subwavelength apertures : hole size and the transition from surface plasmon to waveguide transmission, » *Appl. Phys. Lett.*, **85**, no. 9, pp. 1472–1474 (2004).
- [59] P. MARTHANDAM et R. GORDON, « Plasmonic bragg reflectors for enhanced extraordinary optical transmission through nano-hole arrays in a gold film, » *Opt. Express*, **15**, no. 209, pp. 12995 (2007).
-

-
- [60] T. RINDZEVICIUS, Y. ALAVERDYAN, A. DAHLIN, F. HOOK, D.S. SUTHERLAND et M. KALI, « Plasmonic sensing characteristics of single nanometric holes, » *Nano Lett.*, **5**, no. 11, pp. 2335–2339 (2005).
- [61] K.A. TETZ, L. PANG et Y. FAINMAN, « High-resolution surface plasmon resonance sensor based on linewidth-optimized nanohole array transmittance, » *Opt. Lett.*, **31**, no. 10, pp. 1528–1530 (2006).
- [62] A.G. BROLO, E. ARCTANDER, R. GORDON, B. LEATHEM et K.L. KAVANAGH, « Nanohole-enhanced raman scattering, » *Nano Lett.*, **4**, no. 10, pp. 2015–2018 (2004).
- [63] W.L. BARNES, A. DEREUX et T.W. EBBESEN, « Surface plasmon subwavelength optics, » *Nature*, **424**, pp. 824–830 (2003).
- [64] Y. KANAMORI, M. SHIMONO et K. HANE, « Fabrication of transmission color filters using silicon subwavelength gratings on quartz substrates, » **18**, no. 20, pp. 2126–2128 (2006).
- [65] J. FENG, T. OKAMOTO, J. SIMONEN et S. KAWATA, « Color-tunable electroluminescence for white organic light-emitting devices through coupled surface plasmons, » *Appl. Phys. Lett.*, **90**, pp. 081106 (2007).
- [66] T.J. KIM, T. THIO, T.W. EBBESEN, D.E. GRUPP et H.J. LEZEC, « Control of optical transmission through metals perforated with subwavelength hole arrays, » *Opt. Lett.*, **24**, no. 4, pp. 256–258 (1999).
- [67] C-L. PAN, C-F. HSIEH, R-P. PAN, M. TANAKA, F. MIYAMARU, M. TANI et M. HANGYO, « Control of enhanced thz transmission through metallic hole arrays using nematic liquid crystal, » *Opt. Express*, **13**, no. 11, pp. 3921–3930 (2005).
- [68] J.Y. SUH, E.U. DONEV, R. LOPEZ et L.C. FELDMAN R.F. HAGLUND, « Modulated optical transmission of subwavelength hole arrays in metal-vo₂ films, » *Appl. Phys. Lett.*, **88**, pp. 133115 (2006).
- [69] E. POPOV, M. NEVIERE, S. ENOCH et R. REINISCH, « Theory of light transmission through subwavelength periodic hole arrays, » *Phys. Rev. B*, **62**, no. 23, pp. 16100–16108 (2000).
- [70] E. POPOV, S. ENOCH, G. TAYEB, M. NEVIÈRE B. GRALAK et N. BONOD, « Enhanced transmission due to nonplasmon resonance in one- and two-dimensional gratings, » *Appl. Opt.*, **43**, no. 5, pp. 999–1008 (2004).
- [71] J.D. JACKSON, *Electrodynamique Classique* (Dunod) (2001).
- [72] A. ROBERTS et R.C. MCPHEDRAN, « Bandpass grids with annular apertures, » *IEEE Trans. Antennas Propag.*, **36**, no. 5, pp. 607 (1988).
-

-
- [73] P.A. KRUG, D.H. DAWES, R.C. MCPHEDRAN, W. WRIGHT, J.C. MACFARLANE et L.B. WHITBOURN, « Annular-slot arrays as far-infrared bandpass filters, » *Opt. Lett.*, **14**, no. 17, pp. 931–933 (1989).
- [74] J. TAKAHARA, S. YAMAGISHI, H. TAKI, A. MORIMOTO et T. KOBAYASHI, « Guiding of a one-dimensional optical beam with nanometer diameter, » *Opt. Lett.*, **22**, no. 7, pp. 475–477 (1997).
- [75] F.I. BAIDA, D. VAN LABEKE, G. GRANET, A. MOREAU et A. BELKHIR, « Origin of the super-enhanced light transmission through a 2-d metallic annular aperture array : a study of photonic bands, » *Appl. Phys. B*, **79**, pp. 1–8 (2004).
- [76] M.J. LOCKYEAR, A.P. HIBBINS, J. ROY SAMBLES et C.R. LAWRENCE, « Microwave transmission through a single subwavelength annular aperture in a metal plate, » *Phys. Rev. Lett.*, **94**, pp. 193902 (2005).
- [77] W. FAN, S. ZHANG, B. MINHAS K.J. MALLOY et S.R.J. BRUECK, « Enhanced infrared transmission through subwavelength coaxial metallic arrays, » *Phys. Rev. Lett.*, **94**, pp. 33902 1–4 (2005).
- [78] S.M. ORBONS, A. ROBERTS, D.N. JAMIESON, M.I. HAFTEL, C. SCHLOCKERMANN, D. FREEMAN et B. LUTHER-DAVIES, « Extraordinary optical transmission with coaxial apertures, » *Appl. Phys. Lett.*, **90**, pp. 251107 (2007).
- [79] J. SALVI, M. ROUSSEY, F.I. BAIDA, M.P. BERNAL, A. MUSSOT, T. SYLVESTRE, H. MAILLOTTE, D. VAN LABEKE, A. PERENTSE, I. UTKE, C. SANDU, P. HOFFMANN et B. DWIR, « Annular aperture arrays : study in the visible range of the electromagnetic spectrum, » *Opt. Lett.*, **30**, no. 13, pp. 1611–1613 (2005).
- [80] C. GENET et T. W. EBBESEN, « Light in tiny holes, » *Nature*, **445**, pp. 39–46 (2007).
- [81] J. RYBCZYNSKI, K. KEMPA, A. HERCZYNSKI, Y. WANG, M.J. NAUGHTON, Z.F. REN, Z.P. HUANG, D. CAI et M. GIERSING, « Subwavelength waveguide for visible light, » *Appl. Phys. Lett.*, **90**, pp. 21104 1–3 (2007).
- [82] T. THIO, « Coaxing light into small spaces, » *Nature Nanotechnology*, **2**, pp. 136–138 (2007).
- [83] F. BAIDA, « Enhanced transmission through subwavelength metallic coaxial apertures by excitation of the tem mode, » à paraître dans *Appl. Phys. B* en 2007.
- [84] J. HASHIZUME et F. KOYAMA, « Plasmon enhanced optical near-field probing of metal nanoaperture surface emitting laser, » *Opt. Express*, **12**, no. 25, pp. 6391–6396 (2004).
-

-
- [85] H. GAI, J. WANG, Q. TIAN, W. XIA et X. XU, « Experimental investigation of the performance of an annular aperture and a circular aperture on the same very-small-aperture laser facet, » *Appl. Opt.*, **46**, no. 25, pp. 6449–6453 (2007).
- [86] E.D. PALIK, réd., *Handbook of optical constants of solids* (Academic Press Inc., San Diego, California) (1985).
- [87] P.B. JOHNSON et R.W. CHRISTY, « Optical constants of the noble metals, » *Phys. Rev. B*, **6**, no. 12, pp. 4370–4379 (1972).
- [88] K. YEE, « Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations, » *IEEE Trans Antennas Propag.*, **14**, pp. 302–307 (1966).
- [89] A. TAFLOVE et S.C. HAGNESS, *Computational electrodynamics the finite-difference time-domain method* (Artech House) (2000).
- [90] B. ENGQUIST et A. MADJA, « Absorbing boundary conditions for the numerical simulation of waves, » *Mathematics of computation*, **31**, pp. 629–651 (1977).
- [91] G. MUR, « Absorbing boundary conditions for the finite-difference approximation of the time-domain electromagnetic field equations, » *Trans. Electromagnetic Compatibility*, **23**, pp. 377–382 (1981).
- [92] J.-P. BERENGER, « A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves, » *J. Comput. Phys.*, **114**, pp. 185–200 (1994).
- [93] N.W. ASHCROFT et N.D. MERMIN, *Physique des solides* (EDP Sciences) (2002).
- [94] C. KITTEL, *Physique de l'état solide* (Dunod) (2002).
- [95] R.M. JOSEPH, S.C. HAGNESS et A. TAFLOVE, « Direct time integration of maxwell's equations in linear dispersive media with absorption for scattering and propagation for femtosecond electromagnetic pulses, » *Opt. Lett.*, **16**, no. 18, pp. 1412–1414 (1991).
- [96] A. VIAL, A.-S. GRIMAULT, D. MACIAS, D. BARCHIESI et MARC LAMY DE LA CHAPELLE, « Improved analytical fit of gold dispersion : Application to the modeling of extinction spectra with a finite-difference time-domain method, » *Phys. Rev. B*, **71**, pp. 085416 (2005).
- [97] A.D. RAKIC, A.B. DJURISIC, J.M. ELAZAR et M.L. MAJEWSKI, « Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices, » *Appl. Opt.*, **37**, no. 22, pp. 5271–5283 (1998).
- [98] K.S. KUNZ et R.J. LUEBBERS, *The finite difference time domain method for electromagnetics* (CRC Press LLC) (2000).
-

-
- [99] Q. CAO et P. LALANNE, « Negative role of surface plasmons in the transmission of metallic gratings with very narrow slits, » *Phys. Rev. Lett.*, **88**, no. 5, pp. 057403 (2002).
- [100] F. I. BAIDA, A. BELKHIR, D. VAN LABEKE et O. LAMROUS, « Subwavelength metallic coaxial waveguides in the optical range : Role of the plasmonic modes, » *Phys. Rev. B*, **74**, pp. 205419 (2006).
- [101] M.I. HAFTEL, C. SCHLOCKERMANN et G. BLUMBERG, « Enhanced transmission with coaxial nanoapertures : role of cylindrical surface plasmons, » *Phys. Rev. B*, **74**, pp. 235405 (2006).
- [102] F.I. BAIDA, Y. POUJET, B. GUIZAL et D. VAN LABEKE, « New design for enhanced transmission and polarization control through near-field optical microscopy probes, » *Opt. Commun.*, **256**, pp. 190–195 (2005).
- [103] D. VAN LABEKE, D. GÉRARD, B. GUIZAL, F.I. BAIDA et L. LI, « An angle-independent frequency selective surface in the optical range, » *Opt. Express*, **14**, no. 25, pp. 11945–11951 (2006).
- [104] B. GREENE, *L'Univers élégant* (Folio essais) (1999).
- [105] A. PERENTES, I. UTKE, B. DWIR, M. LEUTENEGGER, T. LASSER, P. HOFFMANN, F. BAIDA, M.P. BERNAL, M. ROUSSEY, J. SALVI et D. VAN LABEKE, « Fabrication of arrays of sub-wavelength nano-apertures in an optically thick gold layer on glass slides for optical studies, » *Nanotechnology*, **16**, pp. S273–S277 (2005).
- [106] H. ELSNER et H.G. MEYER, « Nanometer and high aspect ratio patterning by electron beam lithography using a simple duv negative tone resist, » *Microelectron. Eng.*, **57–58**, pp. 291–296 (2001).
- [107] S.M. ORBONS, D. FREEMAN, B. LUTHER-DAVIES, B.C. GIBSON, S.T. HUNTINGTON, D.N. JAMIESON et A. ROBERTS, « Optical properties of silver composite metamaterials, » *Physica B*, **394**, pp. 176–179 (2007).
- [108] E. H. SYNGE, « Suggested method for extending microscopic resolution into the ultra-microscopic region, » *Philosophical Magazine*, **6**, pp. 356–362 (1928).
- [109] D. COURJON, K. SARAYEDDINE et M. SPAJER, « Scanning tunneling optical microscopy, » *Opt. Commun.*, **71**, no. 1,2, pp. 23–28 (May 1989).
- [110] K. KARRAI et R.D. GROBER, « Piezoelectric tip-sample distance control for near field optical microscopes, » *Appl. Phys. Lett.*, **66**, no. 14, pp. 1842–1844 (1995).
- [111] D. COURJON, J.-M. VIGOUREUX, M. SPAJER, K. SARAYEDDINE et S. LEBLANC, « External and internal reflection near field microscopy : experiment and results, » *Appl. Opt.*, **29**, no. 26, pp. 3734–3740 (1990).
-

-
- [112] D. VAN LABEKE et D. BARCHIESI, « Probes for scanning tunneling optical microscopy : a theoretical comparison, » *J. Opt. Soc. Am. A*, **10**, no. 10, pp. 2193–2201 (1993).
- [113] T. GROSJEAN et D. COURJON, « Polarization filtering induced by imaging systems : effect on image structure, » *Phys. Rev. E*, **67**, no. 4, pp. 46611 (2003).
- [114] Y. POUJET, M. ROUSSEY, J. SALVI, F.I. BAIDA, D. VAN LABEKE, A. PERENTES, C. SANTSCI et P. HOFFMANN, « Super-transmission of light through subwavelength annular aperture arrays in mettalic films : Spectral analysis and near-field optical images in the visible range, » *Photonics and Nanostructures : Fundamentals and Applications*, **4**, pp. 47–53 (2006).
- [115] Y. POUJET, J. SALVI, F.I. BAIDA, D. VAN LABEKE, A. PERENTES, C. SANTSCI et P. HOFFMANN, « Near-field optical images of subwavelength annular aperture arrays exhibiting an extraordinary transmission, » à paraître dans *Journal of Microscopy* en 2007.
- [116] A. MUSSOT, T. SYLVESTRE, L. PROVINO et H. MAILLOTTE, « Generation of a broadband single-mode supercontinuum in a conventionnal dispersion shifted fiber by use a nanosecond microchip laser, » *Opt. Lett.*, **28**, no. 19, pp. 1820–1822 (2003).
- [117] C. COURVOISIER, *Etude d'un continuum de lumière femtoseconde : applications au domaine biologique ; microscopie et spectroscopie en temps résolu*, Thèse de doctortat, Université de Franche-Comté (2006).
- [118] J.M. DUDLEY, G. GENTY et S. COEN, « Supercontinuum generation in photonic crystal fiber, » *Rev. Mod. Phys.*, **78**, pp. 1135–1184 (2006).
- [119] J. BRAVO-ABAD, F.J. GARCIA-VIDAL et L. MARTIN-MORENO, « Resonant transmission of light through finite chains of subwavelength holes in a metallic film, » *Phys. Rev. Lett.*, **93**, pp. 22741 (2004).
- [120] Y. POUJET, J. SALVI et F.I. BAIDA, « 90% extraordinary optical transmission in the visible range through annular aperture metallic arrays, » *Opt. Lett.*, **32**, no. 20, pp. 2942–2944 (2007).
- [121] A. NAHATA, R.A. LINKE, T. ISHI et K. OHASHI, « Enhanced nonlinear optical conversion from a periodically nanostructured metal film, » *Opt. Lett.*, **28**, no. 6, pp. 423–425 (2003).
- [122] M. AIROLA, Y. LIU et S. BLAIR, « Second-harmonic generation from an array of sub-wavelength metal apertures, » *J. Opt. A : Pure Appl. Opt.*, **7**, pp. S118–S123 (2005).
-

-
- [123] A. LESUFFLEUR, L.K.S. KUMAR et R. GORDON, « Enhanced second harmonic generation from nanoscale double-hole arrays in a gold film, » *Appl. Phys. Lett.*, **88**, pp. 261104 (2006).
- [124] J.A.H. VAN NIEUWSTADT, M. SANDTKE, R.H. HARMSSEN, F.B. SEGERINK, J.C. PRANGSMA, S. ENOCH et L. KUIPERS, « Strong modification of the nonlinear response of metallic subwavelength hole arrays, » *Phys. Rev. Lett.*, **97**, pp. 146102 (2006).
- [125] W. FAN, S. ZHANG, K.J. MALLOY, S.R.J. BRUECK, N.C. PANOIU et R.M. OSGOOD, « Second harmonic generation from patterned gaas inside a subwavelength metallic hole array, » *Opt. Express*, **14**, no. 21, pp. 9570–9575 (2006).
- [126] T. XU, X. JIAO, G.P. ZHANG et S. BLAIR, « Second-harmonic emission from sub-wavelength apertures : effects of aperture symmetry and lattice arrangement, » *Opt. Express*, **15**, no. 21, pp. 13894–13906 (2007).
- [127] W. FAN, S. ZHANG, N.-C. PANOIU, A. ABDENOUR, S. KRISHNA, R.M. OSGOOD, K.J. MALLOY et S.R.J. BRUECK, « Second harmonic generation from a nanopatterned isotropic nonlinear material, » *Nano Lett.*, **6**, no. 5, pp. 1027–1030 (2006).
- [128] A.G. BROLO, S.C. KWOK, M.G. MOFFITT, R. GORDON, J. RIORDON et K.L. KAVANAGH, « Enhanced fluorescence from arrays of nanoholes in a gold film, » *J. Am. Chem. Soc.*, **127**, pp. 14936–14941 (2005).
- [129] H. RIGNEAULT, J. CAPOULADE, J. DITINGER, J. WENGER, N. BONOD, E. POPOV, T.W. EBBESEN et P-F. LENNE, « Enhancement of single-molecule fluorescence detection in subwavelength apertures, » *Phys. Rev. Lett.*, **95**, pp. 117401 (2005).
- [130] J. WENGER, P-F. LENNE, E. POPOV et H. RIGNEAULT, « Single molecule fluorescence in rectangular nano-apertures, » *Opt. Express*, **13**, no. 18, pp. 7035–7044 (2005).
- [131] E. POPOV, M. NEVIÈRE, J. WENGER, P-F. LENNE, H. RIGNEAULT, P. CHAUMET, N. BONOD, J. DITINGER et T.W. EBBESEN, « Field enhancement in single subwavelength apertures, » *J. Opt. Soc. Am. A*, **23**, no. 9, pp. 2342–2348 (2006).
- [132] H. CAGLAYAN, I. BULU et E. OZBAY, « Extraordinary grating-coupled microwave transmission through a subwavelength annular aperture, » *Opt. Express*, **13**, no. 5, pp. 1666–1671 (2005).
-

- [133] H. CAO, A. AGRAWAL et A. NAHATA, « Controlling the transmission resonance lineshape of a single subwavelength aperture, » *Opt. Express*, **13**, no. 3, pp. 763–769 (2005).
- [134] A. AGRAWAL et A. NAHATA, « Coupling terahertz radiation onto a metal wire using a subwavelength coaxial aperture, » *Opt. Express*, **15**, no. 14, pp. 9022–9028 (2007).
- [135] M.I. HAFTEL, C. SCHLOCKERMANN et G. BLUMBERG, « Role of cylindrical surface plasmons in enhanced transmission, » *Appl. Phys. Lett.*, **88**, pp. 193104 (2006).
-