HAL
open science

Etude optique de cristaux photoniques: opales et cavités 2D

Amaury Avoine

To cite this version:

Amaury Avoine. Etude optique de cristaux photoniques: opales et cavités 2D. Optique [physics.optics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2011. Français. NNT : . tel-00671221

HAL Id: tel-00671221

https://theses.hal.science/tel-00671221

Submitted on 16 Feb 2012

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.

THESE DE DOCTORAT de l'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE
Spécialité
La physique, de la particule à la matière condensée

Présentée par

Amaury AVOINE

Pour obtenir le titre de
DOCTEUR EN SCIENCES de l'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE

Etude optique de cristaux photoniques : opales et cavités 2D

Thèse dirigée par Agnès MAITRE
à l'Institut des NanoSciences de Paris

soutenue le 12 Décembre 2011

Jury : Françoise LOZES (rapporteur)
Daniel BLOCH (rapporteur)
Alberto BRAMATI (président du jury)
Pham Thu NGA (examinatrice)
Sylvain GIGAN (examinateur)
Agnès MAITRE (directrice de thèse)

Remerciements

J'ai effectué ce travail de thèse à l'Institut des NanoSciences de Paris et je souhaite remercier Claudine Noguera et Bernard Perrin, qui ont assuré successivement la direction du laboratoire, de m'y avoir accueilli.

Je remercie Alberto Bramati d'avoir présidé mon jury de thèse, ainsi que Daniel Bloch et Françoise Lozes d'avoir accepté d'en être les rapporteurs. Merci également à Sylvain Gigan et Pham Thu Nga pour leur participation en tant qu'examinateurs.

Je remercie Benoît Dubertret de l'ESPCI, Olivier Gauthier-Lafayer du LAAS et Pham Thu Nga de l'IMS, ainsi que leurs équipes respectives, de m'avoir permis de travailler sur des échantillons d'aussi bonne qualité.

Cette thèse a été réalisée sous la direction d'Agnès Maître, dont le dynamisme et l'engagement ont été un soutien constant durant ces trois années. On oublie trop souvent à quel point la rigueur scientifique est essentielle dans la recherche, et c'est une qualité qui chez elle m'inspire le plus grand respect. Je la remercie chaleureusement.

Je tiens à remercier les membres de l'équipe, en commençant par Laurent Coolen pour sa patience et sa gentillesse, et pour qui j'ai la plus profonde gratitude tant sa participation à la correction de ce manuscrit est immense. Ont aussi participé Jean-Marc Frigerio et Paul Benalloul, que je remercie également pour leur bonne humeur, et en particulier Paul pour avoir su, en d'autres circonstances, m'apporter des paroles pleines de sens et d'expérience. Je remercie Catherine Schwob, pour sa disponibilité et son soutien, ainsi que Carlos Barthou et Willy Daney de Marcillac, dont la compétence et la sympathie ne m'ont jamais fait défaut. Merci aussi à Julien Laverdant, Thi-Phuong Ngo et Ikbel Mallek-Zouari pour leur grande gentillesse.

Je remercie tous mes amis thésards, Ieva, Antoine, Raphaëlle, Hugo, Clotilde, Delphine, Hong, Cherif et Nicolas. J'ai partagé avec certains d'entre eux un bureau, des manip' ou des conférences, et avec tous d'excellents moments. Je leur délaisse, non sans un certain amusement, la charge de porter la croix. Mais mon sourire en coin n'est que façade. Je leur souhaite à tous de terminer leur thèse dans les meilleures conditions.

Et qu'en est-il de Francois et Sophie, mes compères, mes deux mousquetaires ? Pour eux, point de remerciements besoin il n'y a. Ce serait trop long. Je leur souhaite, simplement, la plus belle des suites.

Je remercie également les filles, Hyo-Sun, Arane, Emilie, Alexandra, Leslie et Young-Jee, qui ont soufflé un vent de folie durant cette thèse. Je n'oublie pas la team esca, Nicolas, Richard et Gwen, et dans laquelle j'ai bien l'intention de regagner les galons perdus pendant la rédaction.

Je remercie Eun-Jung dont le soutien, fort et de tous les instants, m'a toujours été précieux. Je lui souhaite tout le bonheur possible.

Je remercie ma mère, Rémi et Claire qui sont et seront toujours avec moi. Et Fred, aussi.

Enfin, je remercie mon père.

Table des matières

Introduction générale **1**

1 Bandes interdites dans un cristal photonique **5**

1.1 Interférences sur des plans parallèles 7

1.1.1 Description du problème 7

1.1.2 Espace réciproque 8

1.2 Cristal photonique 1D : le miroir de Bragg 9

1.2.1 Equations de Maxwell 10

1.2.2 Théorème de Bloch 11

1.2.3 Ouverture de la bande interdite dans un miroir de Bragg 12

1.3 Calcul numérique du diagramme de bandes 16

1.3.1 Orthogonalité des vecteurs propres appartenant au même ensemble . . . 16

1.3.2 Minimisation du quotient de Rayleigh 17

1.3.3 Calcul numérique par le logiciel MIT Photonic Bands 18

1.3.4 Interprétation qualitative du quotient de Rayleigh 18

1.4 Cristal photonique 2D : le réseau de trous 19

1.4.1 Réseau triangulaire de trous 19

1.4.2 Diagramme de bandes du réseau de trous 21

1.4.3 Mécanisme de formation de la bande interdite dans le réseau de trous . . 23

1.4.4 Diagramme de bandes d'une couche suspendue 24

1.5 Cristal photonique 3D : l'opale 27

1.5.1 Définition de la structure cfc 27

1.5.2 Diagramme de bandes d'une opale 29

1.6 Conclusion 31

2 Propriétés optiques d'une opale **33**

2.1 Fabrication 34

2.2 Caractérisation structurelle 35

2.2.1 Définition de la structure cubique à faces centrées 35

2.2.2 Caractérisation AFM 37

2.2.3 Ellipsométrie 37

2.2.4 Profilométrie 40

2.3 Description du dispositif 41

2.4 Résultats expérimentaux 44

2.4.1 Spectres de réflexion spéculaire non polarisés 44

2.4.2 Spectres de réflexion spéculaire polarisés 45

2.5 Effets décrits par un matériau homogène 46

2.5.1 Variation de la réflectivité aux longueurs d'onde élevées 46

2.5.2 Franges de Fabry-Pérot 49

2.6 Lien théorique entre diagramme de bandes et lois de Bragg 50

2.6.1 Diagrammes de bandes : directions $L \to U \to X$ et $L \to U \to K$ 51

2.6.2 Loi de Bragg : pics de réflexion principaux aux petits angles 53

2.6.3 Lois de Bragg : pics de réflexion secondaires 54

2.6.4 Loi de Bragg : pics de réflexion principaux aux grands angles 56

2.7 Caractérisation de l'opale avec les lois de Bragg 57

2.7.1 Ajustement de la longueur d'onde des pics de réflexion spéculaire 57

2.7.2 Limites du modèle des plans réfléchissants : anticroisement 60

2.7.3 Diagramme de bandes : première comparaison avec les données expérimentales 61

2.8 Nouvelle méthode de détermination de l'indice effectif d'une opale 63

2.8.1 Etude théorique de l'anticroisement 63

2.8.2 Détermination de l'indice effectif de l'opale par centrage de l'anticroisement 68

2.9 Observation du second pic en réflexion spéculaire 69

2.9.1 Modèle de la mâcle par réflexion 69

2.9.2 Réflexion spéculaire et conditions de Laue 70

2.9.3 Condition spéculaire 71

2.9.4 Longueur d'onde de l'onde deux fois diffractée 73

2.10 Etude en polarisation 75
2.10.1 Spectres polarisés s et p 76
2.10.2 Angle de Brewster 78
2.10.3 Angle de diffraction critique 80
2.10.4 Effet Brewster et diagrammes de bandes 85
2.11 Conclusion 88

3 Fabrication et simulations numériques d'une cavité de cristal photonique planaire 91

3.1 Echantillons 93
3.1.1 Procédé de fabrication 93
3.1.2 Caractérisation AFM 96
3.1.3 Géométrie des cavités 96
3.2 Substrat de verre et modes résonants 97
3.3 Méthode de FDTD 100
3.3.1 Calcul de l'évolution temporelle d'un champ 100
3.3.2 Calcul du flux à travers une surface 102
3.3.3 Conditions aux limites 103
3.4 Simulations FDTD des modes résonants d'une cavité L3 103
3.4.1 Paramètres généraux des simulations 103
3.4.2 Recherche des modes résonants 103
3.4.3 Polarisation des modes résonants 107
3.4.4 Facteur de qualité des modes résonants 109
3.4.5 Lien avec la largeur à mi-hauteur des pics 110
3.5 Conclusion 111

4 Etude optique d'une cavité de cristal photonique planaire 113

4.1 Méthodes de caractérisation 115
4.1.1 Méthode de la source interne 115
4.2 Utilisation de la luminescence intrinsèque 116
4.3 Couplage évanescent à un guide d'onde 117
4.4 Rétro-réflexion en polarisation croisée 118
4.5 Dispositif expérimental 120

4.5.1 Description du dispositif 120
4.5.2 Spectromètre et couplage à la fibre 122
4.5.3 Réponse en polarisation du dispositif 123
4.6 Protocole 125
4.6.1 Spectres de diffusion 125
4.6.2 Normalisation 126
4.6.3 Traitement des courbes 128
4.6.4 Spectres normalisés 128
4.7 Spectres diffusés par le cristal photonique 129
4.8 Spectres diffusés par une cavité 132
4.8.1 Spectres non polarisés 132
4.8.2 Spectres polarisés 132
4.8.3 Comparaison avec les spectres rapportés dans la littérature 134
4.8.4 Comparaison avec les simulations 134
4.9 Influence de la géométrie de la cavité 139
4.9.1 Influence du rayon des trous du cristal r_0 140
4.9.2 Influence du rayon des trous de bord de la cavité r_1 142
4.9.3 Influence du décalage des trous de bord s 144
4.10 Conclusion 144

Conclusion générale et perspectives **147**

Annexe **159**

Introduction générale

La première publication concernant la formation d'une bande interdite complète dans un cristal photonique à trois dimensions date de 1987 [1], dans laquelle Eli Yablonovitch prédit la possibilité d'inhiber complètement l'émission d'un émetteur placé à l'intérieur du cristal. C'est aussi la première publication introduisant le concept de cristaux photoniques, et de leur potentiel pour la manipulation de l'émission lumineuse de fluorophores. Après cet article fondateur, la question était de savoir quel type de structure peut engendrer une telle bande interdite. Un an plus tard, les travaux de John [2] montrent que la structure cubique à faces centrées (cfc) est susceptible de présenter une bande interdite complète, mais la tentative de démontrer expérimentalement ce résultat théorique échoue [3].

En 1990, Ho *et al.* montrent théoriquement, avec la méthode numérique des ondes planes, que la formation d'une bande interdite complète est possible dans une structure cfc dont les éléments ne sont pas sphériques : la structure diamant [4]. Ce résultat est immédiatement confirmé expérimentalement l'année suivante par la fabrication de la « Yablonobite » [5, 6], qui consiste en un réseau de trous percés suivant différentes directions à travers un matériau diélectrique. La « yablonovite » est le premier cristal photonique présentant une bande interdite complète à trois dimensions (de périodicité submicrométrique), et la preuve expérimentale qu'un confinement total de la lumière est possible. A la suite de cette avancée considérable, différentes structures ont été proposées théoriquement, comme la structure cfc de pores dans un matériau diélectrique [7] ou la structure « tas de bois » [8, 9].

La difficulté principale fut alors la synthèse de ces structures à des échelles suffisamment réduites pour présenter une bande interdite dans le proche infrarouge ou dans le domaine visible. La lithographie électronique permet de graver une grande variété de motifs [10, 11]. Cependant, cette technique présente l'inconvénient d'être coûteuse et limitée à des dimensions de l'ordre de quelques microns.

En 1995, Astratov *et al.* [12] proposent d'aborder la fabrication de cristaux photoniques à trois dimensions par une stratégie différente : la synthèse d'opales artificielles. Ces structures, inspirées des opales naturelles, sont constituées d'un empilement périodique auto-organisé de billes diélectriques. Cette technique ne nécessite pas de recours à des procédés en centrale technologique, et devient très populaire. Elle permet de plus d'obtenir des échantillons de dimensions centimétriques. En 1997, Velev *et al.* synthétisent la première opale inverse (billes d'air dans un matériau diélectrique) [13] présentant une bande interdite complète et confirment ainsi les travaux de Sözuer *et al.* [7].

La recherche sur les opales se divise en trois axes majeurs :

- l'amélioration des procédés de fabrication afin de synthétiser des opales de la meilleure qualité cristalline possible,
- l'inclusion contrôlée d'un défaut (guide ou défaut ponctuel) afin d'exploiter les propriétés de confinement de la bande interdite,
- la compréhension des propriétés optiques des opales, soit par des notions d'interférences, soit par la notion de bande interdite.

L'étude sur les opales menée dans cette thèse s'inscrit dans ce dernier axe de recherche. Un certain nombre de questions concernant les propriétés de réflexion sur les opales restent irrésolues dans la littérature, voire mal comprises, et sont souvent attribuées aux défauts du réseau cristallin sans que leur rôle soit clairement expliqué. Notre étude a pour objectif de répondre à certaines de ces questions.

En parallèle de la recherche sur les cristaux photoniques à trois dimensions, les différents groupes de recherche ont porté une attention toute particulière aux cristaux photoniques à deux dimensions, plus accessibles aux diverses méthodes d'étude numérique et à la fabrication aux échelles nécessaires aux applications d'optique intégrée. Ces structures présentent une bande interdite permettant de confiner la lumière suivant deux directions de l'espace, et de nombreuses propriétés de guidage de la lumière ont déjà été obtenues [14, 15]. En particulier, les réseaux triangulaires de trous cylindriques, gravés par lithographie électronique dans une couche diélectrique, ont fait l'objet d'une recherche soutenue car ils permettent d'obtenir une bande interdite omnidirectionnelle dans le plan, la propagation de la lumière étant confinée dans la couche diélectrique par réflexion totale interne.

L'inclusion d'un défaut dans un cristal photonique à deux dimensions offre la possibilité de contrôler l'émission spontanée d'un émetteur. Un des thèmes de recherche principaux de l'équipe « Nanophotonique et optique quantique » dans laquelle j'ai effectué cette thèse, est le contrôle de l'émission spontanée de nanocristaux par couplage à des structures photoniques (opales [16], surfaces d'or [17], surfaces d'or nanostructurées [18], micropiliers, nanoantennes), et dans la perspective d'un tel couplage, nous avons développé une méthode de spectroscopie de diffusion permettant de caractériser les propriétés de résonance des cavités de cristal photonique planaire, et ce de façon non intrusive, à l'opposé de la plupart des techniques de caractérisation existantes.

Cette technique permet la détermination de la position spectrale, de la polarisation et du facteur de qualité des modes résonants d'une cavité, autant d'information essentielles afin d'obtenir un couplage efficace. Nous l'appliquons à l'étude de cavités de différentes géométries, et montrons la possibilité d'accorder les propriétés des modes résonants. Nous soutenons la pertinence des résultats obtenus par la comparaison à des simulations numériques.

Ce manuscrit est composé de quatre chapitres :

- Le chapitre 1 est une introduction aux principes de formation de la bande interdite dans un cristal photonique. Nous étudions son mécanisme de formation dans un miroir de Bragg, un réseau triangulaire de trous et une opale.
- Le chapitre 2 est une étude des propriétés optiques d'une opale. Nous commençons par décrire la technique de fabrication de l'opale d'étude, synthétisée par nos collaborateurs de l'*Institute of Materials Science* à Hanoï. Nous effectuons une caractérisation de ses

propriétés structurelles par diverses techniques et de ses propriétés optiques par réflectométrie. Les pics de réflexion mesurés peuvent être interprétés soit par une approche d'interférences sur des plans parallèles, soit par l'étude du diagramme de bandes de l'opale, et nous expliquons le lien entre ces deux approches. Nous déterminons ensuite l'indice effectif de l'opale par la méthode généralement adoptée dans la littérature, montrons ses limites, et proposons une méthode originale donnant une valeur de l'indice cohérente avec les valeurs issues de moyens de caractérisation différents. Enfin, nous proposons une interprétation à deux phénomènes : l'observation du pic de réflexion secondaire aux angles de détection spéculaires et l'annulation de l'intensité du pic de réflexion principale à un angle proche de l'angle de Brewster.

- Le chapitre 3 présente les cavités de cristal photonique planaire fabriquées par nos collaborateurs du *Laboratoire d'Analyse et d'Architecture des Systèmes* à Toulouse. Nous expliquons le procédé de fabrication et présentons la caractérisation par microscope à force atomique d'une de ces cavités. Nous effectuons ensuite l'étude numérique d'une cavité, en calculant le spectre des modes résonants et la distribution de leur champ électrique, afin de déterminer théoriquement les positions spectrales, les polarisations et les facteurs de qualité de ces modes.
- Le chapitre 4 est consacré à l'étude expérimentale des résonances optiques de cavités de cristal photonique planaire. Nous commençons par décrire brièvement les techniques de caractérisation principales existantes, puis nous présentons la méthode de spectroscopie de diffusion développée au sein de l'équipe. Nous étudions ensuite les spectres diffusés par différentes régions de la structure photonique (cristal, cavité) que nous comparons à nos calculs numériques. Nous terminons par l'étude de l'influence de la géométrie sur les modes résonants.

Chapitre 1

Bandes interdites dans un cristal photonique

Dans un cristal photonique, la modulation périodique de l'indice crée des conditions de propagation particulières pour une onde électromagnétique. En effet, une onde dont le vecteur d'onde est orienté dans la direction de périodicité du cristal s'y propage de façon cohérente, sans diffusion. On observe également la formation d'une bande interdite, c'est-à-dire une gamme de fréquences pour laquelle une onde ne peut se propager dans le cristal. Cette bande interdite explique en grande partie l'intérêt que la communauté scientifique porte aux cristaux photoniques, et est à l'origine des propriétés de réflexion d'une opale et de confinement dans une cavité planaire, les deux structures étudiées dans cette thèse.

La formation de la bande interdite résulte de la distribution particulière du champ électromagnétique d'une onde dans le cristal photonique. On peut également l'expliquer en posant les conditions d'interférences constructives de l'onde aux interfaces diélectriques constituant la structure. Dans ce chapitre, nous expliquons les mécanismes de formation de la bande interdite en augmentant progressivement la dimensionnalité du cristal considéré. Nous commençons par décrire les conditions d'interférences constructives pour un modèle simple à une dimension : un réseau de plans. Nous montrons ensuite qu'une bande interdite s'ouvre dans un miroir de Bragg, structure constituée par l'alternance de deux couches d'épaisseurs finies et d'indices différents, en résolvant de façon analytique le problème de la propagation d'une onde dans cette structure. Nous étudions ensuite le cas d'un réseau bidimensionnel de trous gravés dans un matériau diélectrique d'épaisseur infinie, puis d'épaisseur finie. Nous terminerons par la description du diagramme de bandes d'une opale, réseau tridimensionnel de billes.

1.1 Interférences sur des plans parallèles

1.1.1 Description du problème

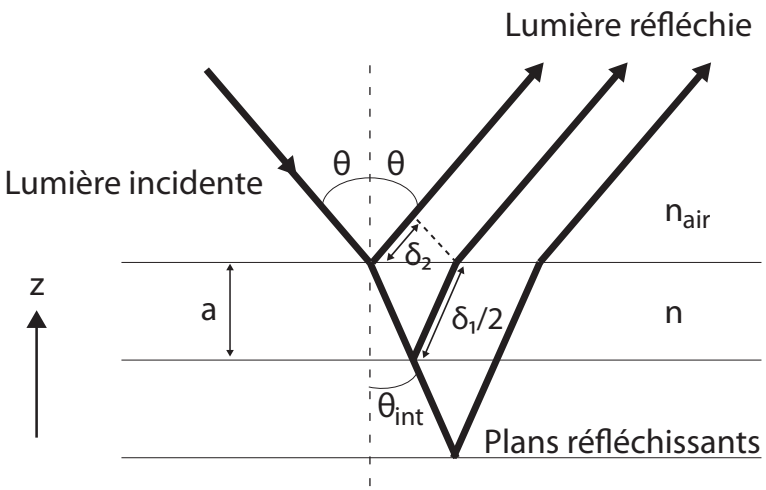

FIGURE 1.1 – Schéma représentatif du modèle des plans réfléchissants dans un milieu homogène d'indice n : θ est l'angle d'incidence et de réflexion externe, θ_{int} l'angle de réfraction interne. Les plans réfléchissants sont espacés d'une distance a. La différence de marche est donnée par $\delta = \delta_1 - \delta_2$.

On considère deux milieux semi-infinis, le premier étant l'air et le second un milieu d'indice n dans lequel sont disposés des plans partiellement réfléchissants infiniment fins de vecteur directeur $\hat{\boldsymbol{z}}$ et régulièrement espacés d'une distance a (voir figure 1.1). Une onde d'incidence θ par rapport à la normale aux plans est réfractée à l'interface entre les deux milieux avec un angle θ_{int}, et les deux angles sont reliés par la relation de Snell-Descartes : $n_{air}\,\sin\theta = n\,\sin\theta_{int}$, où $n_{air} = 1$. L'onde est alors partiellement réfléchie sur chaque plan, et on observe un faisceau lumineux réfléchi si la différence de marche δ est un multiple de sa longueur d'onde dans le vide $\lambda = 2\pi c/\omega$ telle que : $m\lambda = \delta = (\delta_1 - \delta_2)$. Ces termes s'écrivent :

$$\delta_1 = 2\,n\,a/\cos\theta_{int}$$
$$\delta_2 = 2\,n\,a\,\tan\theta_{int}\,\sin\theta_{int}$$

On en déduit la condition d'interférences constructives :

$$m\lambda = \delta_1 - \delta_2 = 2\,n\,a\,\cos\theta_{int} \tag{1.1}$$

Cette dernière relation constitue la loi de Bragg.[1] Cette loi décrit l'évolution des longueurs d'onde réfléchies en fonction de l'angle d'incidence.

1. Remarquons qu'en physique des rayons X, où l'angle d'incidence est défini par rapport au plan formé par les atomes, la relation (1.1) s'écrit avec un sinus à la place du cosinus.

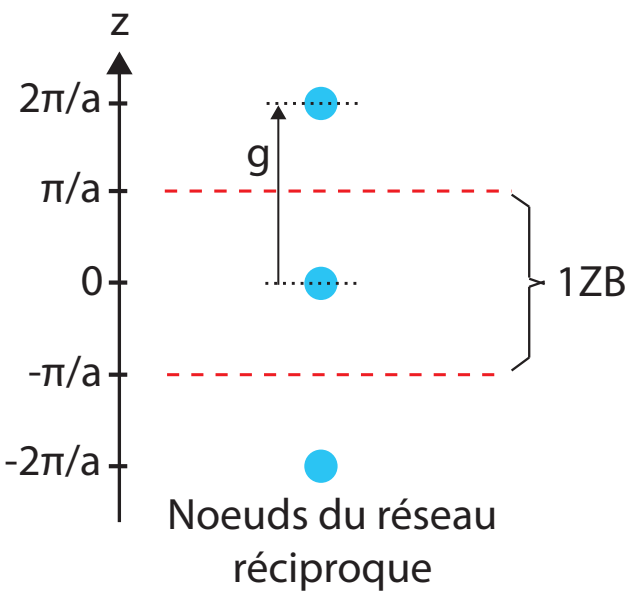

FIGURE 1.2 – Schéma représentatif du réseau réciproque associé à la structure présentée dans la figure 1.1 : les nœuds du réseau réciproque (en bleu) sont espacés suivant la direction z de $g = 2\pi/a$ où $\boldsymbol{g} = g\hat{\boldsymbol{z}}$ est le vecteur primitif de la maille réciproque. Les lignes en pointillés rouges représentent les limites de la première zone de Brillouin (1ZB), et cette zone correspond à la maille primitive du réseau réciproque.

1.1.2 Espace réciproque

Le modèle des plans réfléchissants de la figure 1.1 considère un réseau de plans périodiquement espacés, dans lequel la périodicité est définie à une dimension suivant l'axe z par la distance a entre les plans. La maille de ce réseau est alors donnée par le vecteur primitif $\boldsymbol{a} = a\,\hat{\boldsymbol{z}}$, et pour un tel réseau, on définit dans l'espace de Fourier un réseau réciproque relié au réseau de l'espace direct par la relation :

$$\boldsymbol{a} \cdot \boldsymbol{g} = 2\pi \tag{1.2}$$

où $\mathbf{g}$ est le vecteur primitif du réseau réciproque. Le réseau obtenu est un réseau de points régulièrement espacés suivant l'axe z de $g = 2\pi/a$ (voir figure 1.2). On définit alors la maille primitive de ce réseau, c'est-à-dire la cellule élémentaire qui, répétée à l'infini, reconstruit le réseau. L'origine de cette maille est un point du réseau, et ses limites correspondent aux plans situés à mi-chemin entre le point origine et ses deux plus proches voisins (lignes rouges dans la figure 1.2). Dans le cas 1D, dans la direction z et avec la cote de l'origine de la maille primitive choisie à $z = 0$, ces limites sont situées à $z = \pm\pi/a$. On appelle aussi cette maille primitive la première zone de Brillouin (1ZB).

Cette représentation dans l'espace de Fourier est adaptée pour déterminer si une onde incidente de vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ quelconque est diffractée par le réseau. On montre [19] qu'une

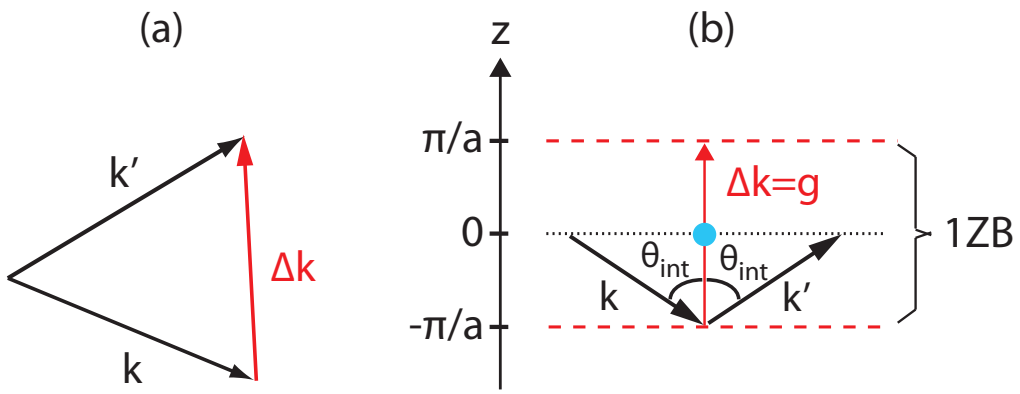

FIGURE 1.3 – (a) Schéma représentant les vecteurs d'onde incident, diffracté et de diffraction $\boldsymbol{k}$, $\boldsymbol{k'}$ et $\Delta\boldsymbol{k} = \boldsymbol{k'} - \boldsymbol{k}$, respectivement. (b) Le vecteur d'onde incident $\boldsymbol{k}$ est diffracté de façon spéculaire avec un vecteur d'onde $\boldsymbol{k'}$ avec $k' = k$ car le vecteur d'onde diffracté satisfait la relation $\Delta\boldsymbol{k} = \boldsymbol{g}$, où $\boldsymbol{g}$ est un vecteur primitif du réseau réciproque. De façon équivalente, la condition de diffraction est remplie si le vecteur $\boldsymbol{k}$ pointe sur un bord de la zone de Brillouin.

onde de vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ tel que $\|\boldsymbol{k}\| = 2\pi\, n/\lambda$ est diffractée suivant un vecteur d'onde $\boldsymbol{k'}$ si le vecteur $\Delta\boldsymbol{k} = \boldsymbol{k'} - \boldsymbol{k}$ (voir figure 1.3(a)) satisfait à la condition de Laue :

$$\Delta\boldsymbol{k} = \boldsymbol{G} \tag{1.3}$$

où $\boldsymbol{G}$ est un vecteur du réseau réciproque. Dans le cas d'un réseau unidimensionnel, la relation (1.3) s'exprime avec $\boldsymbol{G} = m\boldsymbol{g}$ où m est un entier. Ayant par ailleurs $\|\boldsymbol{k'}\| = \|\boldsymbol{k}\|$, géométriquement, cette relation signifie que le vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ est diffracté si sa norme satisfait la relation $k = \pi/(a\cos\theta_{int})$ (dans le cas $m = 1$, voir figure 1.3(b)), c'est-à-dire si son extrémité est en contact avec l'une des extrémités de la zone de Brillouin. On note en particulier le cas où $\boldsymbol{k} = k\hat{\boldsymbol{z}}$, pour lequel le vecteur $\boldsymbol{k}$ est diffracté si $k = \pi/a$.

La relation (1.3) se réécrit sous la forme $2\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{G} = G^2$, de laquelle nous retrouvons la condition d'interférences constructives :

$$\begin{aligned} 2(2\pi\, n/\lambda)\cos\theta_{int} &= 2\pi m/a \\ \text{soit} \quad m\lambda &= 2\, n\, a\cos\theta_{int} \end{aligned}$$

La loi de Bragg est donc l'expression de la condition de Laue dans l'espace direct pour un réseau dont la périodicité est unidimensionnelle.

1.2 Cristal photonique 1D : le miroir de Bragg

Le modèle que nous venons de présenter est une version simplifiée du miroir de Bragg, pour lequel les plans réfléchissants sont des couches d'épaisseur non nulle. On souhaite à présent

résoudre le problème de la propagation d'une onde électromagnétique dans un miroir de Bragg. Pour cela, nous introduisons les équations de Maxwell qui établissent les conditions de propagation pour une onde électromagnétique. Nous présenterons ensuite le théorème de Bloch, qui nous permettra d'affirmer que dans un réseau, les solutions des équations de Maxwell peuvent s'exprimer sous la forme d'une onde plane modulée par une fonction périodique de période celle du réseau. Nous aborderons enfin le problème de la propagation d'une onde électromagnétique dans un miroir de Bragg, et le concept de bande interdite.

1.2.1 Equations de Maxwell

On considère une onde harmonique de champs électrique $\boldsymbol{E}$ et magnétique $\boldsymbol{H}$ complexes, fonctions de l'espace et du temps, que l'on peut écrire :

$$\begin{aligned}\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r},t) =& \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r})e^{-i\omega t}\\ \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) =& \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})e^{-i\omega t}\end{aligned}$$

où $\boldsymbol{r}$ un vecteur de l'espace et où $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})$ et $\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r})$ correspondent à la distribution spatiale des champs. Dans un milieu diélectrique transparent et non dispersif, les champs $\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r})$ et $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})$ satisfont aux équations de Maxwell :

$$\nabla \times \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}) - i\omega\mu_0\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}) = 0 \qquad (1.4)$$

$$\nabla \times \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}) + i\omega\epsilon_0\epsilon(\boldsymbol{r})(\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})) = 0 \qquad (1.5)$$

$$\nabla \cdot \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}) = 0 \qquad (1.6)$$

$$\nabla \cdot |\epsilon(\boldsymbol{r})\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})| = 0 \qquad (1.7)$$

où ϵ_0, μ_0 et $\epsilon(\boldsymbol{r})$ sont respectivement la permittivité diélectrique du vide, la perméabilité magnétique du vide et la permittivité relative. L'équation (1.6) implique la transversalité du champ électromagnétique, c'est-à-dire que si $\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r})$ est une onde plane de la forme $\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}) = \boldsymbol{H}_0\, e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}}$, avec $\boldsymbol{H}_0$ le vecteur amplitude de l'onde et $\boldsymbol{k}$ le vecteur d'onde, alors $\boldsymbol{H}_0 \cdot \boldsymbol{k} = 0$.

On découple les champs des équations (1.4) et (1.5) pour obtenir :

$$\frac{1}{\epsilon(\boldsymbol{r})}\nabla \times \nabla \times \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}) = \frac{\omega^2}{c^2}\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}) \qquad (1.8)$$

$$\nabla \times \left(\frac{1}{\epsilon(\boldsymbol{r})}\nabla \times \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r})\right) = \frac{\omega^2}{c^2}\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}) \qquad (1.9)$$

où $c = 1/\sqrt{\epsilon_0\mu_0}$ est la vitesse de la lumière dans le vide et $\omega/c = k_0 = 2\pi/\lambda_0$ le module du vecteur d'onde dans le vide. Les équations (1.8) et (1.9) sont de la forme :

$$O\boldsymbol{F}(\boldsymbol{r}) = k_0^2\boldsymbol{F} \qquad (1.10)$$

où $\boldsymbol{F}$ représente l'un des champs et O un opérateur agissant dans l'espace des fonctions $\boldsymbol{F}$. Les équations (1.8) et (1.9) sont donc des équations d'état, analogues à l'équation de Schrödinger

en physique quantique, une différence importante étant que ces équations sont vectorielles. Ainsi, un mode solution de l'équation (1.9) par exemple a pour vecteur propre le champ $\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r})$, qui définit la distribution spatiale de son champ magnétique, et pour valeur propre la quantité k_0^2, qui est proportionnelle au carré de la fréquence de ce mode.

1.2.2 Théorème de Bloch

Dans un milieu présentant une périodicité de la permittivité diélectrique $\epsilon = n^2$ dans la direction z et de période a, on définit un opérateur de translation discrète $\hat{T}_a$ tel que $\hat{T}_a\,\epsilon\,(z) = \epsilon\,(z-a) = \epsilon\,(z)$. Cet opérateur appliqué à une onde plane se propageant dans la direction de périodicité z donne :

$$\hat{T}_a\, e^{ikz} = e^{ik(z-a)} = (e^{-ika})e^{ikz} \tag{1.11}$$

L'équation (1.11) signifie que l'opération de translation discrète a pour vecteur propre e^{ikz} et pour valeur propre e^{-ika}. Cette propriété nous permet de classer les modes solutions de l'opérateur $\hat{T}_a$ par valeurs du vecteur d'onde k. En effet, on montre que tout mode de vecteur d'onde $(k + m(2\pi/a))$ où m est un entier, possède la même valeur propre par application de $\hat{T}_a$. Par exemple, pour une onde plane de vecteur d'onde $(k + 2\pi/a)$, on a :

$$\hat{T}_a\, e^{i(k+2\pi/a)z} = e^{i(k+2\pi/a)(z-a)} = (e^{-ika})e^{i(k+2\pi/a)z}$$

où e^{-ika} est donc bien la valeur propre de $e^{i(k+2\pi/a)z}$. Nous avons vu dans la section 1.1.2 que le vecteur $\boldsymbol{g} = (2\pi/a)\hat{\boldsymbol{z}}$ correspondait au vecteur primitif réciproque d'un réseau de période a, et que les limites de la 1ZB associée étaient atteintes pour $k = \pi/a$. Cela signifie que pour tout mode de vecteur $|k| > \pi/a$, il est toujours possible de trouver un mode de vecteur d'onde $|k| \leq \pi/a$ compris dans la 1ZB et possédant la même valeur propre par application de $\hat{T}_a$. On en déduit que l'étude de la totalité des modes propres solutions de l'opérateur de translation discrète $\hat{T}_a$ peut se réduire à l'étude des modes dont le vecteur d'onde est compris dans la maille élémentaire du réseau réciproque.

Les champs $\boldsymbol{E}(z)$ et $\boldsymbol{H}(z)$ solutions de l'équation (1.10) peuvent alors être décomposés en une base de « modes de Bloch », ondes planes modulées par une fonction périodique, ce qui constitue le théorème de Bloch :

$$\boldsymbol{F}(z) = \boldsymbol{F}_k(z) = e^{ikz} \cdot \boldsymbol{u}_k(z) = e^{ikz} \cdot \boldsymbol{u}_k(z+a) \tag{1.12}$$

où $\boldsymbol{F}$ représente $\boldsymbol{E}$ ou $\boldsymbol{H}$ et $\boldsymbol{u}_k(z)$ est une fonction périodique de période a. Ainsi, la recherche des solutions des équations de Maxwell dans la 1ZB d'un système présentant une périodicité de l'indice est équivalente à la détermination de tous les modes propres de type ondes planes du système.

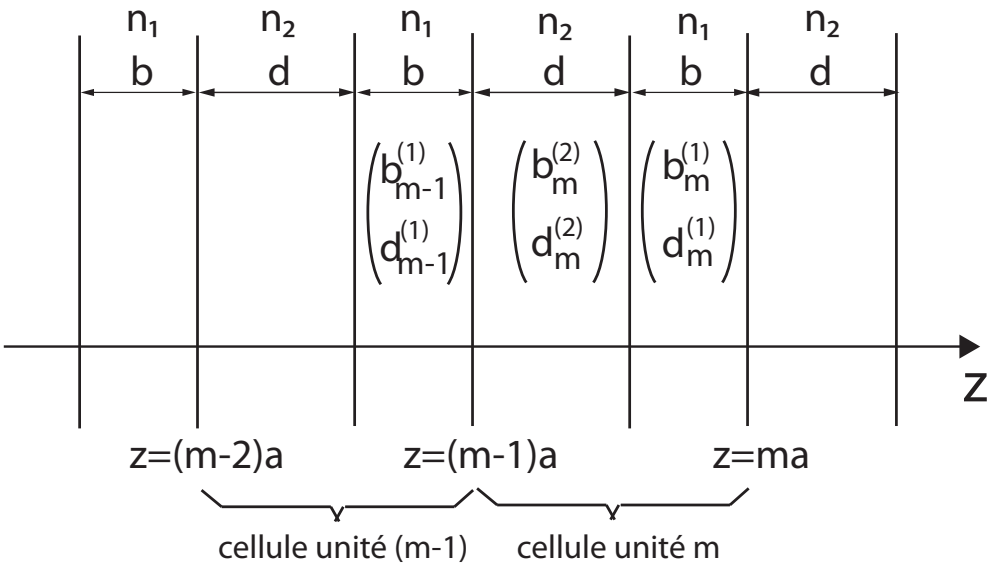

FIGURE 1.4 – Schéma d'un miroir de Bragg dont la périodicité est définie suivant l'axe z, et des ondes planes incidente et réfléchie associées à la m-ième cellule unité et les cellules unités voisines.

1.2.3 Ouverture de la bande interdite dans un miroir de Bragg

On considère à présent un miroir de Bragg, c'est-à-dire une structure formée par l'alternance de deux couches d'épaisseurs finies b et d, et d'indice n_1 et n_2 tels que $n_1 \neq n_2$. L'indice est donc périodique, de période $a = b + d$, et on a :

$$n(z) = n(z + a)$$

où l'axe z est l'axe normal à l'interface entre les couches. La cellule unité est constituée de deux couches b et d juxtaposées. Dans une telle structure, on exprime le champ électrique dans chaque couche par la somme de deux ondes planes, incidente et réfléchie. Si on appelle $b_m^{(\alpha)}$ et $d_m^{(\alpha)}$ les amplitudes complexes incidente et réfléchie du champ électrique dans la m-ième couche d'indice n_α où $\alpha = 1$ ou 2 (voir figure 1.4), la distribution du champ électrique dans la m-ième couche d'indice n_1 pour une onde se propageant suivant l'axe z s'écrit :

$$E(z) = b_m^1 \, e^{ik_1(z-ma)} + d_m^1 \, e^{-ik_1(z-ma)} \tag{1.13}$$

où $k_1 = n_1 \, \omega/c$. D'autre part, d'après le théorème de Bloch défini par la relation (1.12), on a :

$$E(z) = E_k(z)\, e^{ikz}$$

$$\text{et donc} \quad \begin{pmatrix} b_m^1 \\ d_m^1 \end{pmatrix} = e^{ikma} \begin{pmatrix} b_0^1 \\ d_0^1 \end{pmatrix}$$

L'équation (1.13) se réécrit alors de la façon suivante :

$$E_k(z)\, e^{ika} = \left[\left(b_0^1\, e^{ik_1(z-ma)} + d_0^1\, e^{-ik_1(z-ma)}\right)\, e^{-ik(z-ma)}\right]\, e^{ikz} \tag{1.14}$$

L'expression des amplitudes complexes b_0^1 et d_0^1 est déterminée par un calcul matriciel, et la partie réelle de l'équation (1.14) une fois ces expressions injectées s'écrit [20] :

$$\cos ka = \cos k_1 b \cos k_2 d - \frac{1}{2}\left(\frac{n_2}{n_1} + \frac{n_1}{n_2}\right) \sin k_1 b \sin k_2 d = A \tag{1.15}$$

où $k_i = n_i\, \omega/c$. Dans cette dernière équation, on distingue deux régimes :

- si $|A| \leq 1$, le vecteur d'onde $k \leq \pi/a$ est réel ce qui correspond à une onde propagative,
- si $|A| > 1$, les solutions de l'équation (1.15) sont alors des vecteurs d'onde k possédant une partie imaginaire, tels que $k = \pi/a \pm ix$. L'onde est donc évanescente et ne peut se propager dans le miroir de Bragg.

Les courbes de la figure 1.5 représentent les diagrammes de bandes de différentes structures, c'est-à-dire la fréquence ω en fonction du vecteur d'onde $|k| \leq \pi/a$ (ie compris dans la 1ZB). Un mode de vecteur $\boldsymbol{k} = k\hat{\boldsymbol{z}}$ donné se propage à travers la structure à la fréquence indiquée par le diagramme. La fréquence est exprimée en énergie normalisée $a/\lambda = a\omega/(2\pi c)$ et le vecteur d'onde est normalisé par le vecteur de la maille réciproque $\boldsymbol{g} = (2\pi/a)\hat{\boldsymbol{z}}$. La présentation d'un diagramme de bandes en fonction de ces quantités sans unités est pertinente car les propriétés de propagation du champ électromagnétique dans une structure photonique sont invariantes d'échelle.

Les trois diagrammes de bandes des figures 1.5(a), (b) et (c) sont calculés avec l'équation (1.15), et sont tracés pour les mêmes épaisseurs de couches $b = d = 0,5\,a$ mais pour des valeurs de n_1 et n_2 différentes. Le diagramme de la figure 1.5(a) est tracé pour $n_1 = n_2 = 1,5$, une valeur proche de l'indice de la silice dans le domaine visible. Le milieu est donc considéré comme homogène et nous lui avons attribué une périodicité arbitraire de a. Cela nous permet de définir une zone de Brillouin dans laquelle tous les vecteurs k sont inclus et de tracer la courbe $\omega = n_1 kc$ sous cette forme repliée (qui est un artifice de calcul). Les valeurs propres des modes suivent la relation $\omega = c\,k/n_1$. Ce type de diagramme tracé pour un milieu homogène est parfois appelé un « diagramme des photons libres ».

Dans la figure 1.5(b), nous avons conféré un léger écart d'indice aux couches, avec $n_1 = 1,4$ et $n_2 = 1,5$. On a donc un miroir de Bragg, l'indice étant périodique de période a. Ce diagramme est similaire à celui des photons libres, avec une variation linéaire de la fréquence en fonction

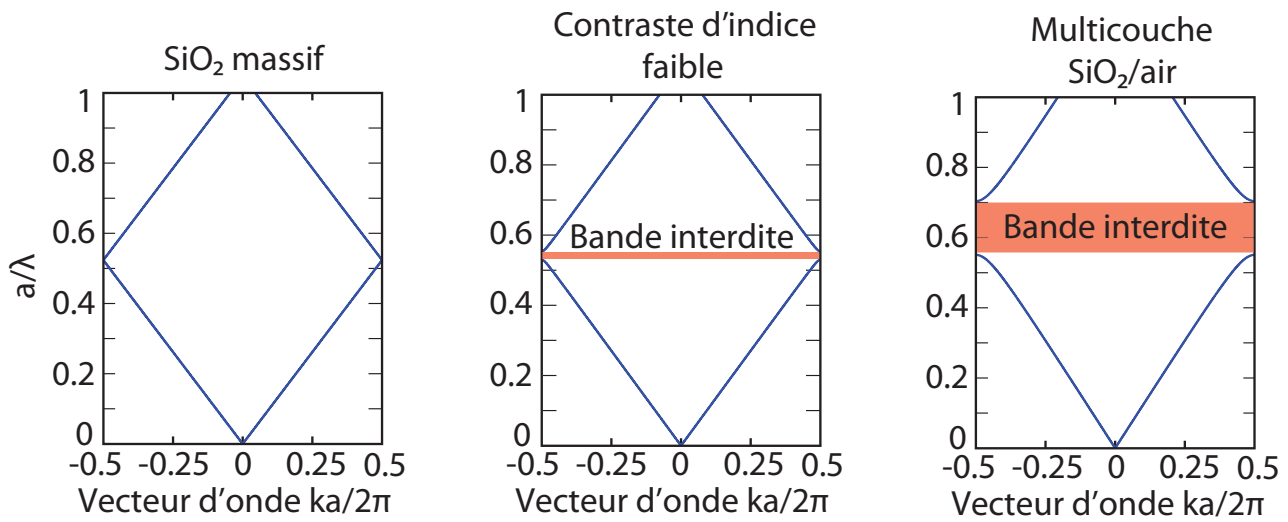

FIGURE 1.5 – Relations de dispersion représentant la fréquence en énergie normalisée a/λ en fonction du vecteur d'onde normalisé $ka/2\pi$ où $(2\pi/a)\hat{\boldsymbol{z}} = \boldsymbol{g}$ est le vecteur primitif de la maille du réseau réciproque. Les épaisseurs des couches valent $b = d = 0,5\,a$. (a) Silice SiO_2 massive : $n_1 = n_2 = 1,5$. (b) Multicouche pour laquelle le contraste d'indice est faible : $n_1 = 1$ et $n_2 = 1,5$. Ouverture d'une bande interdite étroite (en rouge) (c) Multicouche SiO_2/air pour laquelle le contraste d'indice est plus fort : $n_1 = 1$ et $n_2 = 1,5$. La bande interdite est plus large.

du vecteur d'onde. On observe cependant une légère inflexion des bandes aux bords de la zone de Brillouin pour $k = \pi/a$, correspondant à l'ouverture d'une bande interdite étroite, représentée en rouge. Les fréquences situées dans cette bande interdite correspondent aux cas où $|A| > 1$ dans l'équation (1.15). Les ondes correspondantes sont évanescentes et ne peuvent pas se propager dans le cristal : elles sont donc réfléchies.

Le diagramme de la figure 1.5(c) est tracé pour $n_1 = 1$ et $n_2 = 1,5$, et représente donc le diagramme de bandes d'un miroir de Bragg constitué par l'alternance d'une couche d'air et d'une couche de silice. L'écart d'indice par rapport à la structure étudiée dans la figure 1.5(b) est plus important, et on observe un net élargissement de la bande interdite.

Nous traçons à nouveau sur la figure 1.6 le diagramme de bandes d'un miroir de Bragg constitué par l'alternance de couches d'air et de silice, et nous ajoutons la partie imaginaire x (en rouge) du vecteur d'onde $k = \pi/a + ix$ correspondant aux modes évanescents dans la bande interdite, centrée à la fréquence réduite ω_0 et dont les limites sont représentées par des traits noirs en pointillés. Nous avons défini deux axes en abscisse : un axe en unités de $ka/2\pi$ pour les modes propagatifs (|A|<1 dans l'équation (1.15)) et un axe en unités de $xa/2\pi$ pour les modes évanescents (|A|>1 dans l'équation (1.15)). Soulignons que la partie réelle du vecteur d'onde des modes évanescents, qui ne se propagent pas dans le cristal photonique, est toujours égale à $\Re(k) = \pi/a$. On voit que la partie imaginaire de k est minimale aux extrémités de la bande interdite (traits noirs pointillés) avec $x = 0$ (k est réel et l'onde est propagative), et est maximale au centre à $a/\lambda = \omega_0$ (k est imaginaire et l'onde est évanescente) avec $xa/2\pi = 0,06$. Cette propriété aura deux conséquences importantes dans la suite de ce travail :

– un pic du spectre de réflexion d'un cristal photonique a sa longueur d'onde centrée au

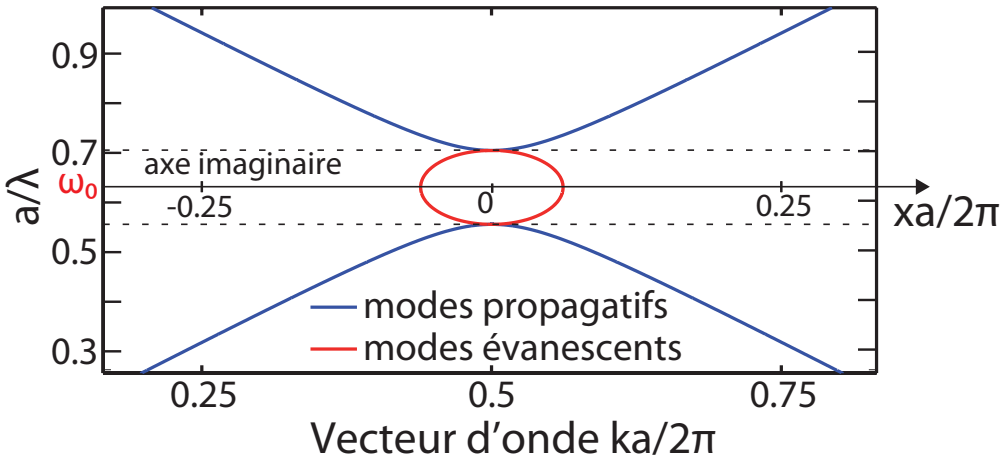

FIGURE 1.6 – Diagramme de bandes d'un miroir de Bragg où $b = d = 0,5a$, $n_1 = 1$ et $n_2 = 1,5$. Les bandes sont tracées en bleu et correspondent aux modes propagatifs (k réel) dans la structure photonique. Les extrémités de la bande interdite sont représentées en traits noirs pointillés. La partie imaginaire x du vecteur d'onde $k = \pi/a + ix$ dans la bande interdite est tracée en rouge. On voit que la partie imaginaire x est maximale au centre de la bande interdite.

centre ω_0 de la bande interdite ,

- un mode que l'on parviendrait à faire exister dans la bande interdite par l'inclusion d'un défaut dans le cristal (cavité de cristal photonique par exemple), est d'autant plus confiné que sa fréquence se rapproche du centre de la bande interdite.

Enfin, nous donnons l'expression analytique de la largeur de la bande interdite $\Delta(\omega)$ dans la cas d'une lame quart d'onde, c'est-à-dire un miroir de Bragg tel que $k_1 b = k_2 d = \pi/2$ (ondes réfléchies en accord de phase au centre de la bande interdite ω_0). Pour une telle structure, on a [20] :

$$\Delta(\omega) = \omega_0 \frac{4}{\pi} \frac{|n_2 - n_1|}{n_2 + n_1} \tag{1.16}$$

Ainsi, plus l'écart d'indice entre les deux couches formant le miroir de Bragg est important, plus la bande interdite est large. Nous avons déjà illustré cette propriété sur les figures 1.5(b) et (c), où la bande interdite du miroir de Bragg constitué de couches de silice et d'air est plus large que celle d'un miroir de Bragg constitué de couches de silice et d'un matériau d'indice $n_1 = 1,4$.

Nous avons montré par une approche diffractive et analytique la formation d'une bande interdite dans un cristal photonique présentant une périodicité de l'indice dans une direction : le miroir de Bragg. Dans la section suivante, nous introduisons le théorème variationnel, qui nous permettra d'interpréter de façon plus qualitative la formation d'une bande interdite. Ce théorème est également à la base de l'outil de simulation que j'utilise pour tracer les diagrammes de bandes de cristaux photoniques à deux et trois dimensions dans la suite de ce manuscrit.

1.3 Calcul numérique du diagramme de bandes

En découplant les équations de Maxwell dans la section 1.2.1, nous avons déduit l'équation d'état sur le champ $\boldsymbol{H}$:

$$\nabla \times \left(\frac{1}{\epsilon(\boldsymbol{r})} \nabla \times \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}) \right) = \frac{\omega^2}{c^2} \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r})$$

Nous réécrivons cette équation en introduisant l'opérateur $\Theta = \nabla \times \frac{1}{\epsilon(\boldsymbol{r})} \nabla \times$ tel que :

$$\Theta \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}) = \frac{\omega^2}{c^2} \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}) \tag{1.17}$$

où $\boldsymbol{H}$ est un vecteur propre de l'opérateur Θ et ω^2/c^2 la valeur propre associée. Le vecteur propre $\boldsymbol{H}$ appartient à l'ensemble de vecteurs propres $[\boldsymbol{H}_0, \boldsymbol{H}_1, ..., \boldsymbol{H}_n]$ associés aux valeurs propres $[\omega_0^2, \omega_1^2, ..., \omega_n^2]$ telles que $\omega_0 \leq \omega_1 \leq ... \leq \omega_n$. On cherche $\boldsymbol{H}$ sous la forme de Bloch, soit $\Theta \boldsymbol{H}_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}) = (\omega^2(\boldsymbol{k})/c^2) \boldsymbol{H}_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r})$, ce qui signifie que pour un vecteur $\boldsymbol{k}$ donné dans la 1ZB correspond un ensemble de vecteurs et de valeurs propres.

Dans un diagramme de bandes, cet ensemble de valeurs propres constitue l'énergie de chaque bande par ordre croissant d'énergie, c'est-à-dire que pour un vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ donné, $\omega_0^2(\boldsymbol{k})/c^2$ est l'énergie de la bande de plus basse énergie, $\omega_1^2(\boldsymbol{k})/c^2$ est celle de la seconde bande de plus basse énergie, et ainsi de suite. Le problème à résoudre est alors la détermination pour chaque $\boldsymbol{k}$ de l'ensemble des $\boldsymbol{H}_{\boldsymbol{k}}$ et de leurs valeurs propres $\omega_n(\boldsymbol{k})$ associée. Pour cela, on fait appel au théorème variationnel, qui permet de déterminer les valeurs propres de l'équation d'état (1.17) pour des vecteurs propres orthogonaux.

1.3.1 Orthogonalité des vecteurs propres appartenant au même ensemble

Nous commençons par définir le produit interne de deux vecteurs champs quelconques $\boldsymbol{A}$ et $\boldsymbol{B}$:

$$(\boldsymbol{A}, \boldsymbol{B}) = \int d^3\boldsymbol{r} \boldsymbol{A}^*(\boldsymbol{r}) \cdot \boldsymbol{B}(\boldsymbol{r}) \tag{1.18}$$

où * dénote un vecteur complexe conjugué. On montre alors [21] que l'opérateur Θ est hermitien [2], c'est-à-dire qu'il vérifie la condition :

2. Dans la section 1.2.1, l'opérateur que nous avons choisi d'utiliser dans l'équation d'état du champ $\boldsymbol{E}$ n'est pas hermitien, et les propriétés dont nous discutons dans la suite ne lui sont pas applicables. C'est pourquoi la résolution se fait sur $\boldsymbol{H}$ et non sur $\boldsymbol{E}$. Il est possible de définir un opérateur hermitien pour le champ de déplacement $\boldsymbol{D} = \epsilon_0 \epsilon(\boldsymbol{r}) \boldsymbol{E}$, mais son expression est nettement plus lourde.

$$(\boldsymbol{A}, \Theta\boldsymbol{B}) = (\Theta\boldsymbol{A}, \boldsymbol{B}) \tag{1.19}$$

Cette relation signifie que lorsque l'on effectue le produit interne de deux vecteurs champs $\boldsymbol{A}$ et $\boldsymbol{B}$ quelconques, le champ sur lequel est appliqué l'opérateur Θ n'a pas d'importance. En remplaçant dans l'équation (1.19) $\boldsymbol{A}$ et $\boldsymbol{B}$ par le champ $\boldsymbol{H_k}$, on a :

$$(\boldsymbol{H_k}, \Theta\boldsymbol{H_k}) = (\omega^2/c^2)(\boldsymbol{H_k}, \boldsymbol{H_k}) \tag{1.20}$$

Des équations (1.19) et (1.20), on déduit une propriété importante des vecteurs propres $\boldsymbol{H_k}$ appartenant à l'ensemble $[\boldsymbol{H}_{0,\boldsymbol{k}}, \boldsymbol{H}_{1,\boldsymbol{k}}, ..., \boldsymbol{H}_{n,\boldsymbol{k}}]$: le produit interne de deux vecteurs propres appartenant à cet ensemble est nul si les valeurs propres associées sont différentes. En effet, prenons dans cet ensemble deux vecteurs propres quelconques, notés $\boldsymbol{H}_{a,\boldsymbol{k}}$ et $\boldsymbol{H}_{b,\boldsymbol{k}}$, associés aux valeurs propres ω_a^2/c^2 et ω_b^2/c^2 respectivement. On écrit alors :

$$\begin{aligned} \omega_a^2(\boldsymbol{H}_{b,\boldsymbol{k}}, \boldsymbol{H}_{a,\boldsymbol{k}}) =& c^2(\boldsymbol{H}_{b,\boldsymbol{k}}, \Theta\boldsymbol{H}_{a,\boldsymbol{k}}) = c^2(\Theta\boldsymbol{H}_{b,\boldsymbol{k}}, \boldsymbol{H}_{a,\boldsymbol{k}}) = \omega_b^2(\boldsymbol{H}_{b,\boldsymbol{k}}, \boldsymbol{H}_{a,\boldsymbol{k}}) \\ \text{soit} \quad & (\omega_a^2 - \omega_b^2)(\boldsymbol{H}_{b,\boldsymbol{k}}, \boldsymbol{H}_{a,\boldsymbol{k}}) = 0 \end{aligned} \tag{1.21}$$

On distinque deux cas :

- $\omega_a \neq \omega_b$, et donc $(\boldsymbol{H}_{b,\boldsymbol{k}}, \boldsymbol{H}_{a,\boldsymbol{k}}) = 0$: deux vecteurs propres quelconques appartenant au même ensemble sont orthogonaux (au sens du produit interne) si leurs valeurs propres associées sont différentes.
- $\omega_a = \omega_b$ et les valeurs propres sont dégénérées. Dans ce cas, les vecteurs propres associés ne sont pas nécessairement orthogonaux.

1.3.2 Minimisation du quotient de Rayleigh

Nous utilisons alors le théorème variationnel qui stipule que les valeurs propres d'un opérateur hermitien sont obtenues par minimisation du quotient de Rayleigh, qui correspond pour tout $\boldsymbol{H}$ à la quantité suivante :

$$U_f(\boldsymbol{H}) = \frac{(\boldsymbol{H}, \Theta\boldsymbol{H})}{(\boldsymbol{H}, \boldsymbol{H})} \tag{1.22}$$

En injectant l'équation (1.20), on a :

$$U_f(\boldsymbol{H}) = \frac{(\omega^2/c^2)(\boldsymbol{H}, \boldsymbol{H})}{(\boldsymbol{H}, \boldsymbol{H})} = \omega^2/c^2 \tag{1.23}$$

La minimisation de $U_f(\boldsymbol{H})$ permet donc de déterminer le couple $(\boldsymbol{H}_0, \omega_0)$, qui correspond à la valeur propre de plus basse énergie et la distribution spatiale du champ associée. Le couple $(\boldsymbol{H}_1, \omega_1)$ est obtenu en déterminant le second minimum de $U_f(\boldsymbol{H})$, avec la contrainte que $\boldsymbol{H}_1$ soit orthogonal à $\boldsymbol{H}_0$, et ainsi de suite, chaque nouveau vecteur propre devant être orthogonal aux précédents. Ainsi, la recherche des minima de $U_f(H_k)$ pour tous les $\boldsymbol{k}$ de la zone de Brillouin d'un cristal photonique permet de construire son diagramme de bandes.

1.3.3 Calcul numérique par le logiciel MIT Photonic Bands

La minimisation du coefficient de Rayleigh est la méthode utilisée par MIT Photonic Bands (MPB), logiciel libre développé au MIT par Steven Johnson *et al.* [22], et que nous utilisons dans la suite de ce manuscrit pour le calcul des diagrammes de bandes. Ce logiciel résout l'équation d'état (1.17) dans le domaine fréquentiel, par opposition au domaine temporel, ce qui signifie que le calcul suppose les solutions stationnaires. Par application du théorème variationnel, MPB permet de déterminer les vecteurs et valeurs propres de la structure photonique considérée. Nous mettons en avant une des techniques mathématiques utilisées par MPB lors des calculs.

D'après le théorème de Bloch (1.12) le champ magnétique pour une onde se propageant dans la direction de périodicité z s'écrit : $\boldsymbol{H}_k(z) = e^{ikz}\boldsymbol{u}_k(z)$. MPB décompose la fonction périodique $u_k(z)$ en une base d'ondes planes périodiques :

$$u_k(z) = e^{ikz} \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_n(k) e^{i\frac{2\pi n}{a}z} = \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_n(k) h_n(k) \tag{1.24}$$

où les termes h_n sont une base d'ondes planes périodiques et $c_n(k)$ les coefficients de $u_k(z)$ développé en séries de Fourier complexes. Cette technique permet de discrétiser le problème posé par l'équation d'état (1.17). Le nombre de coefficients $c_n(k)$ à déterminer reste cependant infini, et une coupure est appliquée à $n = N$. L'opérateur Θ s'exprime alors par une matrice $N \times N$ dans cette base périodique et le problème consiste en la diagonalisation de cette matrice. Plus N est grand, plus la précision sur la solution apportée au vecteur propre $\boldsymbol{H_k}$ est importante.

MPB utilise d'autres techniques et algorithmes, portant notamment sur la méthode de minimisation du quotient de Rayleigh (méthode du gradient conjugué [22, 23]) ou permettant d'accélérer le processus de convergence vers la solution désirée (utilisation d'un préconditionneur [22, 24]), mais nous ne les détaillons pas ici.

1.3.4 Interprétation qualitative du quotient de Rayleigh

Le quotient de Rayleigh se réécrit en fonction du champ $\boldsymbol{E}$:

$$U_f(\boldsymbol{H}) = \frac{(\nabla \times \boldsymbol{E}, \nabla \times \boldsymbol{E})}{(\boldsymbol{E}, \epsilon(\boldsymbol{r})\boldsymbol{E})} = \frac{\int d^3\boldsymbol{r}\, |\nabla \times \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})|}{\int d^3\boldsymbol{r}\epsilon(\boldsymbol{r})\, |\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})|^2} \tag{1.25}$$

Cette expression du coefficient de Rayleigh nous permet d'interpréter de façon qualitative le comportement du champ électrique dans un matériau diélectrique. En effet, on peut le minimiser de deux façons :

- minimiser le terme $|\nabla \times \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})|$ au numérateur, ce qui revient à minimiser le nombre d'oscillations spatiales (rotationnel de $\boldsymbol{E}$) et donc la fréquence,
- maximiser le terme $\epsilon(\boldsymbol{r})\,|\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})|$ au dénominateur, ce qui implique de concentrer le champ électrique dans les régions de forte constante diélectrique.

On note que pour un mode harmonique l'énergie du champ électromagnétique est continument échangée entre les champs $\boldsymbol{E}$ et $\boldsymbol{H}$, c'est-à-dire que $|\boldsymbol{H}|^2$ est maximum lorsque $|\boldsymbol{E}|^2$ est nul, et vice versa. L'équivalent du second point pour le champ magnétique $\boldsymbol{H}$ est donc que pour minimiser $U_f(\boldsymbol{H})$, le champ $\boldsymbol{H}$ doit être concentré dans les régions de faible constante diélectrique.

Nous avons montré que pour un vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ donné, les vecteurs propres sont orthogonaux entre eux, et la valeur propre ω_0 est obtenue pour le mode dont le champ électrique est le plus concentré dans les régions de forte constante diélectrique de la structure photonique.

Dans la section suivante, nous utilisons ce principe pour expliquer la formation de la bande interdite dans un cristal photonique à deux dimensions.

1.4 Cristal photonique 2D : le réseau de trous

Un cristal photonique 2D est une structure présentant une périodicité de l'indice dans deux directions de l'espace, qui définissent alors un *plan de périodicité*. De la même façon que pour un cristal photonique 1D, une onde se propage à travers le cristal ou est réfléchie si sa fréquence est située dans sa bande interdite. La structure à laquelle nous nous intéressons dans ce manuscrit (chapitres 3 et 4) est un réseau périodique de trous d'air gravés par lithographie électronique dans une couche mince de nitrure de silicium sur verre, et formant un réseau triangulaire.

Dans ce premier chapitre, nous nous limitons à la description du réseau de trous gravés dans une couche suspendue, c'est-à-dire une couche diélectrique entourée d'air (et donc sans substrat de verre). L'étude de cette structure contient les éléments nécessaires à la compréhension du mécanisme de formation de la bande interdite dans un cristal 2D. Nous traiterons le cas d'un cristal photonique avec substrat de verre dans le chapitre 3, en même temps que l'inclusion d'un défaut dans le cristal (cavité). Nous commençons par décrire la géométrie du réseau, en nous plaçant dans le cas d'un cristal « parfait », c'est-à-dire étendu à l'infini dans la direction normale au plan de périodicité. Nous étudierons ensuite le cas d'un cristal photonique d'épaisseur finie.

1.4.1 Réseau triangulaire de trous

La figure 1.7(a) représente un réseau triangulaire de trous d'air (disques blancs) gravés dans un matériau diélectrique (en gris). La période du réseau est de a, et les vecteurs $\boldsymbol{a}_1$ et $\boldsymbol{a}_2$ sont les vecteurs de la maille, tels que :

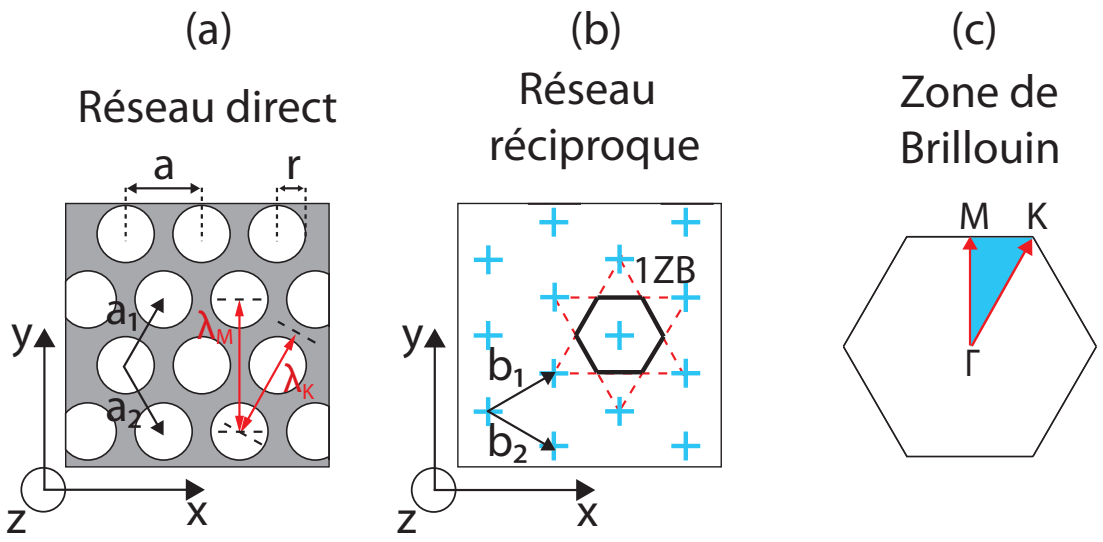

FIGURE 1.7 – Réseau triangulaire de trous d'air gravés dans un matériau diélectrique. Une onde de vecteur d'onde $\boldsymbol{k}_M = (2\pi/\lambda_M)\hat{\boldsymbol{y}}$ ou $\boldsymbol{k}_K = (2\pi/\lambda_K)(\boldsymbol{a}_1/\|\|\boldsymbol{a}_1\|)$ a pour vecteur d'onde dans la zone de Brillouin de la figure (c) $\overrightarrow{\Gamma M}$ ou $\overrightarrow{\Gamma K}$ respectivement. (b) Réseau réciproque de (a). L'hexagone correspond aux limites de la 1ZB, et est construit en traçant les médiatrices (en pointillés rouges) des segments reliant un point du réseau et ses plus proches voisins. (c) Première zone de Brillouin. La partie colorée en bleu correspond à la zone de Brillouin irréductible, dont les points de haute symétrie sont Γ, M et K.

$$\boldsymbol{a}_1 = a(\hat{\boldsymbol{x}} + \sqrt{3}\hat{\boldsymbol{y}})/2 \quad \text{et} \quad \boldsymbol{a}_2 = a(\hat{\boldsymbol{x}} - \sqrt{3}\hat{\boldsymbol{y}})/2$$

Les vecteurs de la maille réciproque $\boldsymbol{b}_1$ et $\boldsymbol{b}_2$, qui vérifient la relation $\boldsymbol{a}_i \cdot \boldsymbol{b}_j = 2\pi\delta_{ij}$ où δ_{ij} est le symbole de Kronecker, s'écrivent alors :

$$\boldsymbol{b}_1 = (2\pi/a)(\hat{\boldsymbol{x}} + \hat{\boldsymbol{y}}/\sqrt{3}) \quad \text{et} \quad \boldsymbol{b}_2 = (2\pi/a)(\hat{\boldsymbol{x}} - \hat{\boldsymbol{y}}/\sqrt{3})$$

et définissent le réseau réciproque schématisé sur la figure 1.7(b), qui est un réseau triangulaire tourné de $\pi/2$ par rapport au réseau direct. Les limites de la zone de Brillouin de ce réseau correspondent à un hexagone, construit en traçant les médiatrices (en pointillés rouges) des segments reliant un point du réseau et ses six plus proches voisins. La figure 1.7(c) représente la zone de Brillouin du réseau hexagonal. On appelle la partie colorée en bleu la zone de Brillouin irréductible. L'étude de la propagation peut se limiter aux vecteurs $\boldsymbol{k}$ compris dans cette zone, le reste de la 1ZB étant identique par symétrie. Les points de haute symétrie de la 1ZB irréductible sont notés Γ, M et K. Les ondes de vecteurs d'onde $\overrightarrow{\Gamma M}$ et $\overrightarrow{\Gamma K}$ en rouge sur la figure 1.7(c) correspondent sur la figure 1.7(a) respectivement à une onde de longueur d'onde $\lambda_M = \sqrt{3}a$ se propageant suivant la direction y et une onde de longueur d'onde $\lambda_K = 3a/2$ se propageant dans la direction colinéaire au vecteur $\boldsymbol{a}_1$.

1.4.2 Diagramme de bandes du réseau de trous

Nous traçons sur la figure 1.8(a) et (b) le diagramme de bandes des photons libres à deux dimensions (pour lequel nous avons défini un réseau fictif de période a, en pointillés dans le milieu homogène) et le diagramme de bandes du réseau décrit dans la figure 1.7(a), respectivement. L'indice du diélectrique est $n = 2,1$ et les trous d'air ont pour rayon $r = 0,38a$. Les deux diagrammes sont tracés pour des vecteurs d'onde $\boldsymbol{k}$ parcourant les bords de la 1ZB irréductible, et donc passant par les trois points de haute symétrie Γ, M et K. Le diagramme est alors divisé en trois parties. La première partie considère les ondes de vecteurs d'onde colinéaires à l'axe $\boldsymbol{y}$ et dont la norme varie continuement de $k = 0$ (point Γ) à $k = \left\|\overrightarrow{\Gamma M}\right\|$ (point M). Dans la seconde partie, l'orientation et la norme de $\boldsymbol{k}$ varient de $\boldsymbol{k} = \overrightarrow{\Gamma M}$ (point M) à $\boldsymbol{k} = \overrightarrow{\Gamma K}$ (point K) de façon à ce que son extrémité pointe constamment sur le segment $[MK]$ de la 1ZB irréductible. La dernière partie considère les ondes de vecteurs d'onde $\boldsymbol{k}$ colinéaires à $\boldsymbol{a}_1$ et dont la norme varie continument de $k = \left\|\overrightarrow{\Gamma K}\right\|$ (point K) à $k = 0$ (point Γ).

Sur le diagramme des photons libres de la figure 1.8(a), les deux premières bandes, numérotées 1 et 2, de la première partie (points Γ à M) du diagramme des photons libres sont des droites, montrant que la relation de dispersion est linéaire avec le vecteur d'onde, et se croisent au point M à une fréquence réduite $a/\lambda \approx 0,3$. Dans un cristal photonique unidimensionnel, la polarisation d'une onde se propageant suivant la direction de périodicité n'a pas d'importance, car la symétrie du réseau reste inchangée par rotation. En figure 1.8(a), les deux polarisations sont confondues.

Dans un cristal photonique bidimensionnel par contre, les polarisations transverse électrique (TE, champ $\boldsymbol{E}$ parallèle au plan de périodicité, voir figure 1.7(c)) et transverse magnétique (TM, champ $\boldsymbol{E}$ orthogonal au plan de périodicité) d'une onde se propageant dans le plan de périodicité sont découplées. La conséquence est que les diagrammes de bandes tracés pour ces deux polarisations sont différents. Sur la figure 1.8(b), les bandes de polarisation TE sont tracées en bleu, et celles de polarisation TM en pointillés.

La première bande correspond aux bandes TE1 et TM1, tandis que la seconde correspond aux bandes TE2 et TM2. On observe qu'au point M, les bandes TE et TM sont séparées, formant ainsi deux bandes interdites, une pour chaque polarisation. Du point M au point K, les bandes de polarisation TM se rapprochent progressivement jusqu'à se croiser au point K, et il n'existe pas de bande interdite de polarisation TM dans cette direction. En revanche, les bandes de polarisation TE restent séparées jusqu'au point K, et la largeur des bandes interdites formées est suffisante pour qu'elles se recouvrent et forment une bande interdite pour toutes les orientations du vecteur d'onde de polarisation TE. Cette bande interdite omnidirectionnelle (en rouge) est comprise entre $a/\lambda \approx 0,35$ et $a/\lambda \approx 0,45$, les fréquences réduites aux points K de la bande TE1 et M de la bande TE2.

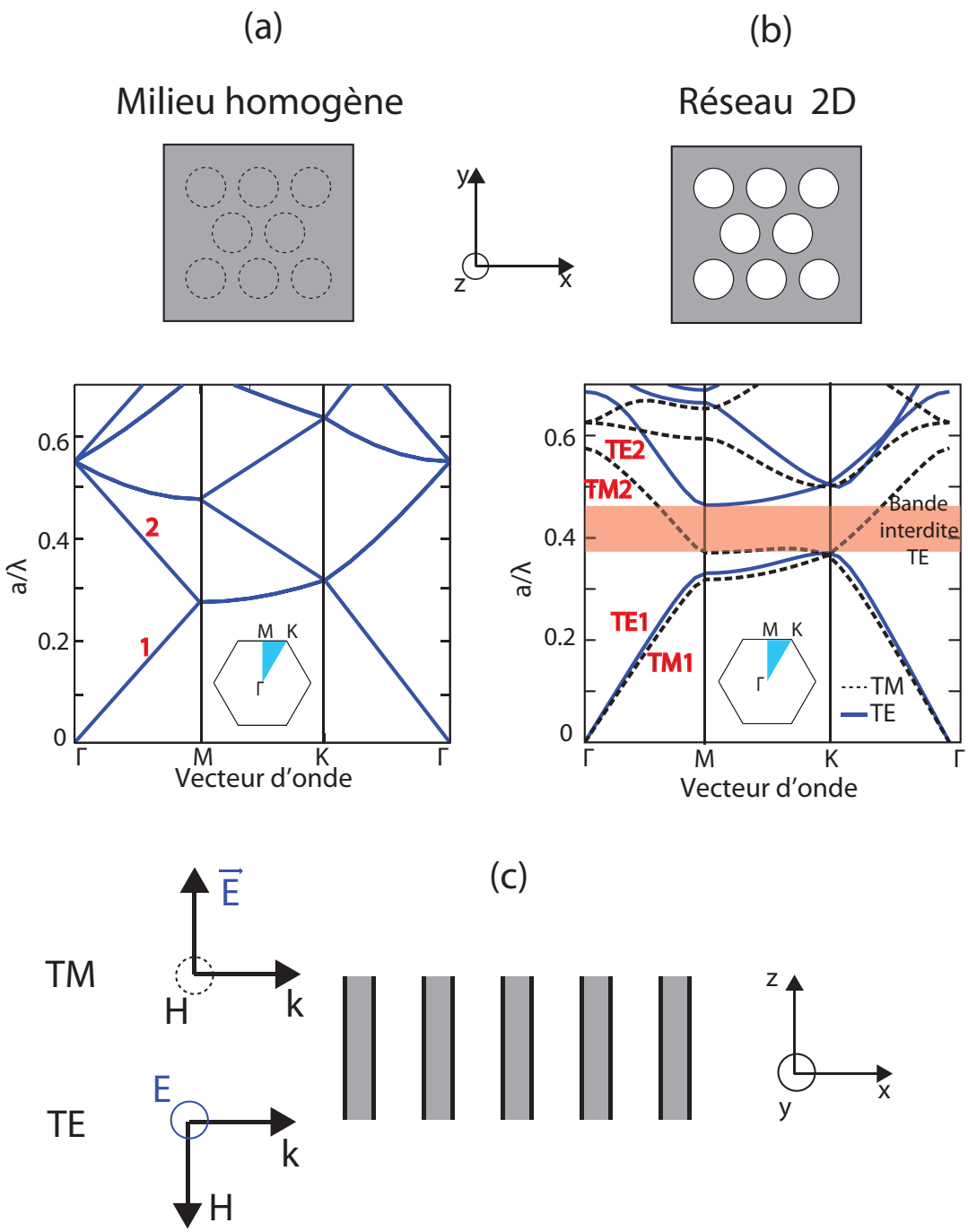

FIGURE 1.8 – (a) Diagramme des photons libres à deux dimensions. L'indice du diélectrique est $n = 2,1$. (b) Diagramme de bandes d'un réseau triangulaire de trous de rayon $r = 0,38a$ gravés dans un matériau diélectrique d'indice $n = 2,1$. Dans un réseau 2D, les polarisations sont découplées et les diagrammes calculés pour la polarisation transverse électrique (TE, bandes bleues) et transverse magnétique (TM, bandes noires pointillés) sont différents. En encart des figures (a) et (b) la zone de Brillouin irréductible. (c) Tranche transverse du réseau étendu à l'infini suivant l'axe z, et orientation des champs TE et TM.

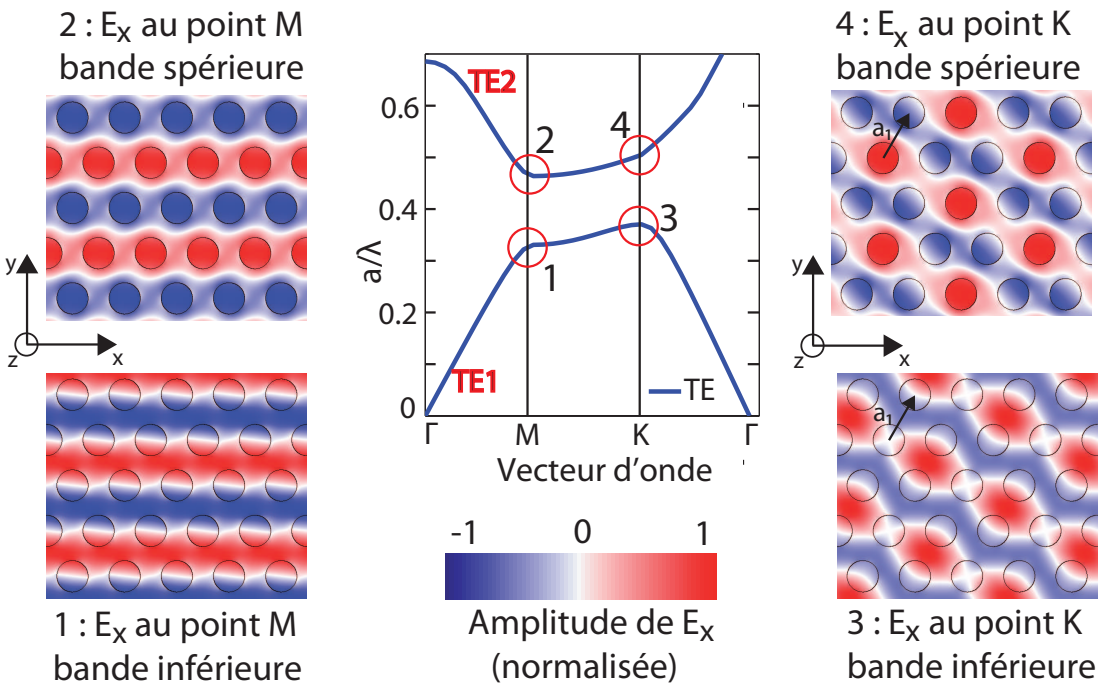

Figure 1.9 – Distributions de la composante suivant l'axe x du champ électrique pour une onde de polarisation TE. Les distributions 1 et 3 sont calculées pour la bande TE1 aux points M et K respectivement. Les distributions 2 et 4 sont calculées pour la bande TE2 aux points M et K respectivement.

1.4.3 Mécanisme de formation de la bande interdite dans le réseau de trous

La raison pour laquelle on observe la formation d'une bande interdite dans toutes les directions pour la polarisation TE mais pas pour la polarisation TM est liée à la géométrie du réseau et à la discontinuité de la densité d'énergie $\epsilon|\boldsymbol{E}|^2$ lorsque le champ $\boldsymbol{E}$ traverse une interface diélectrique. Lors du passage d'un milieu de constante diélectrique ϵ_1 à un milieu de constante diélectrique $\epsilon_2 < \epsilon_1$, la densité d'énergie varie différemment suivant l'orientation du champ $\boldsymbol{E}$:

- si $\boldsymbol{E}$ est parallèle à l'interface (polarisation TM), $|\boldsymbol{E}|$ est conservé donc la densité d'énergie décroît de façon discontinue d'un facteur ϵ_2/ϵ_1,
- si $\boldsymbol{E}$ est orthogonal à l'interface (polarisation TE), $|\boldsymbol{D}|$ est conservé et la densité d'énergie augmente de façon discontinue d'un facteur ϵ_1/ϵ_2.

Prenons l'exemple d'une onde de polarisation TE se propageant dans notre réseau de trous, où les interfaces entre le milieu diélectrique et l'air de constantes diélectriques $\epsilon_1 = n^2$ et $\epsilon_2 = 1$ respectivement. Le champ $\boldsymbol{E}$, parallèle au plan de périodicité, est donc perpendiculaire aux interfaces, et sa densité d'énergie augmente de façon discontinue d'un facteur $\epsilon_1/\epsilon_2 = n^2$ lorsqu'il les traverse. Pour se propager avec une énergie minimale, l'onde électromagnétique distribue alors son champ électrique de façon à éviter d'avoir à traverser les interfaces entre le milieu diélectrique et les trous d'air, ce qui est possible car le réseau diélectrique est connecté, entre les trous.

Sur la figure 1.9, les images 1 et 3 représentent la composante suivant l'axe x du champ électrique de la bande TE1 aux points M et K de la 1ZB irréductible, respectivement, et les cercles représentent le contour des trous. L'amplitude du champ E_x est indiquée par les couleurs bleu (amplitude négative), blanche (amplitude nulle) et rouge (amplitude positive). Au point M, l'onde se propage suivant l'axe y avec une longueur d'onde $\lambda_M = \sqrt{3}a$ (distance entre deux trous dans la direction y) et au point K, l'onde se propage suivant une direction colinéaire à $\boldsymbol{a}_1$ avec une longueur d'onde $\lambda_K = 3a/2$ (mi-distance entre un premier et un quatrième trou dans la direction colinéaire à $\boldsymbol{a}_1$). Pour les deux distributions, le champ E_x est fortement concentré dans les zones situées entre les trous, et est disposé de façon à ce que les nœuds (amplitude nulle, en blanc) de sa distribution traversent les trous. Ainsi, la densité d'énergie est minimale dans les trous et maximale dans la région de fort indice (relation (1.25)).

Les modes des bandes TE2 (images 2 et 4 de la figure 1.9 pour les points M et K respectivement), *doivent être orthogonaux aux modes de la bande TE1* (voir relation (1.21 de la section 1.3.1). Pour cela, ils créent un nœud dans les régions de fort indice, et une partie importante du champ E_x est contrainte à traverser les interfaces diélectriques. La densité d'énergie du champ électrique est alors importante dans les régions de faible indice, puisqu'elle augmente de façon discontinue d'un facteur n^2 en traversant les interfaces, et relativement faible dans celles de fort indice. Comparée à la propagation de deux ondes avec les mêmes vecteurs d'onde dans un milieu homogène d'indice n, la proportion du champ électrique contenue dans les régions de fort indice est nettement moins importante , et d'après le théorème variationnel (voir relation (1.25) dans la section 1.3.4), l'énergie du mode augmente. C'est ce phénomène que l'on observe dans les diagrammes de la figure 1.8, où l'énergie de la bande TE2 (figure 1.8(b)) aux point M et K augmente fortement par rapport à celle de la bande 2 du diagramme des photons libres (figure 1.8(a)). L'écart d'énergie entre les bandes TE1 et TE2 est alors important quelle que soit l'orientation du vecteur d'onde considérée, et une bande interdite large est formée dans toute les directions.

Pour une onde se propageant avec une polarisation TM, le champ $\boldsymbol{E}$ est parallèle aux interfaces diélectriques. Il en résulte que la densité d'énergie reste toujours relativement faible dans les trous d'air, ou de façon équivalente, de concentration importante dans les régions d'indice élevé. Le contraste en énergie entre les bandes TM1 et TM2 n'est alors pas suffisant pour créer une bande interdite de polarisation TM dans toutes les directions.

Cependant, la création d'une bande interdite omnidirectionnelle pour la polarisation TM est possible [25, 26]. Si le rayon des trous d'air est large et l'indice du matériau diélectrique élevé ($r = 0,45a$ et $n = 3,4$ dans la référence [26]), une bande interdite de polarisation TM suffisamment large se forme dans toutes les directions . De plus, une partie des bandes interdites de polarisation TE et TM se recouvrent, et le cristal possède alors une bande interdite complète pour les deux polarisations.

1.4.4 Diagramme de bandes d'une couche suspendue

Le réseau triangulaire de trous gravés dans un matériau diélectrique d'épaisseur infinie constitue un cas purement théorique. Nous étudions à présent le cas d'un réseau de trous gravés à travers une couche suspendue, ou membrane, schématisée sur la figure 1.10(a). La

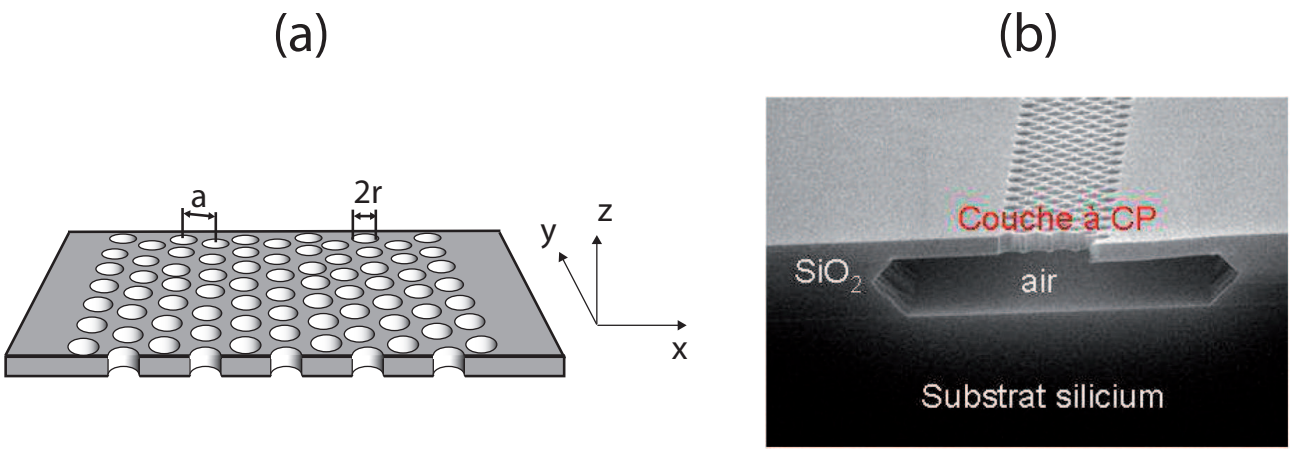

Figure 1.10 – (a) Schéma d'un cristal photonique membranaire. (b) Image MEB d'un cristal photonique membranaire, empruntée à la référence [27].

figure 1.10(b) est une image MEB (Microscopie Electronique à Balayage) d'une telle structure, empruntée à la référence [27], sur laquelle on voit la cavité creusée par gravure chimique sous le réseau de trous, réalisant ainsi la couche suspendue. Cette structure est relativement accessible à la fabrication, et son étude nous permet de considérer des ondes se propageant dans une structure réelle.

Considérons les modes de polarisation TE, l'ouverture d'une bande interdite pour cette polarisation étant plus aisée avec le réseau que nous étudions. La figure 1.11(a) représente le diagramme de bandes d'une membrane, l'indice du matériau diélectrique étant $n = 2,1$, le rayon des trous $r = 0,38a$ et l'épaisseur de la membrane $e = 0,8a$. La construction du diagramme s'effectue de la même manière que pour une structure d'épaisseur infinie, en longeant les bords de la zone de Brillouin irréductible, excepté le fait qu'à présent nous ne considérons plus uniquement des vecteurs d'onde $\boldsymbol{k} = \boldsymbol{k}_{xy}$ parallèles au plan de périodicité, mais bien des vecteurs d'onde hors plan, tels que $k_z \neq 0$. La valeur en abscisse du vecteur d'onde correspond alors à la *projection* du vecteur d'onde de l'onde électromagnétique sur les différentes directions de la 1ZB, k_z étant donné, à $\boldsymbol{k}_{xy}$ fixés, par $k_{xy}^2 + k_z^2 = (\omega/c)^2$.

La différence majeure d'un diagramme de bande calculé pour une structure d'épaisseur finie est l'apparition du cône de lumière (en gris), dont les limites sont établies par la ligne de lumière (en rouge). La ligne de lumière est calculée avec la relation $\omega = ck_{xy}$ et correspond donc à la courbe de dispersion dans l'air. Les fréquences situées au-dessus de la ligne de lumière (donc dans le cône de lumière), telles que $\omega = c|\boldsymbol{k}| = c\sqrt{k_{xy}^2 + k_z^2} > ck_{xy}$, correspondent à des modes radiatifs qui ne sont pas confinés dans le guide planaire. Pour une valeur de k_{xy}^2 donnée, k_z peut prendre toute les valeurs possibles et le cône de lumière constitue un continuum d'état (en gris). Les modes dont la fréquence est située dans le cône de lumière ne sont pas guidés par le cristal photonique.

Il est cependant possible de guider une onde électromagnétique dans la membrane, sous certaines conditions. Tout d'abord, les modes de vecteur d'onde $|\boldsymbol{k}| = k_{xy}$ peuvent être guidés de la même façon que dans un cristal photonique d'épaisseur infinie. Leur norme ne doit toutefois pas être trop élevée, auquel cas la fréquence correspondante se situe au-dessus de la ligne

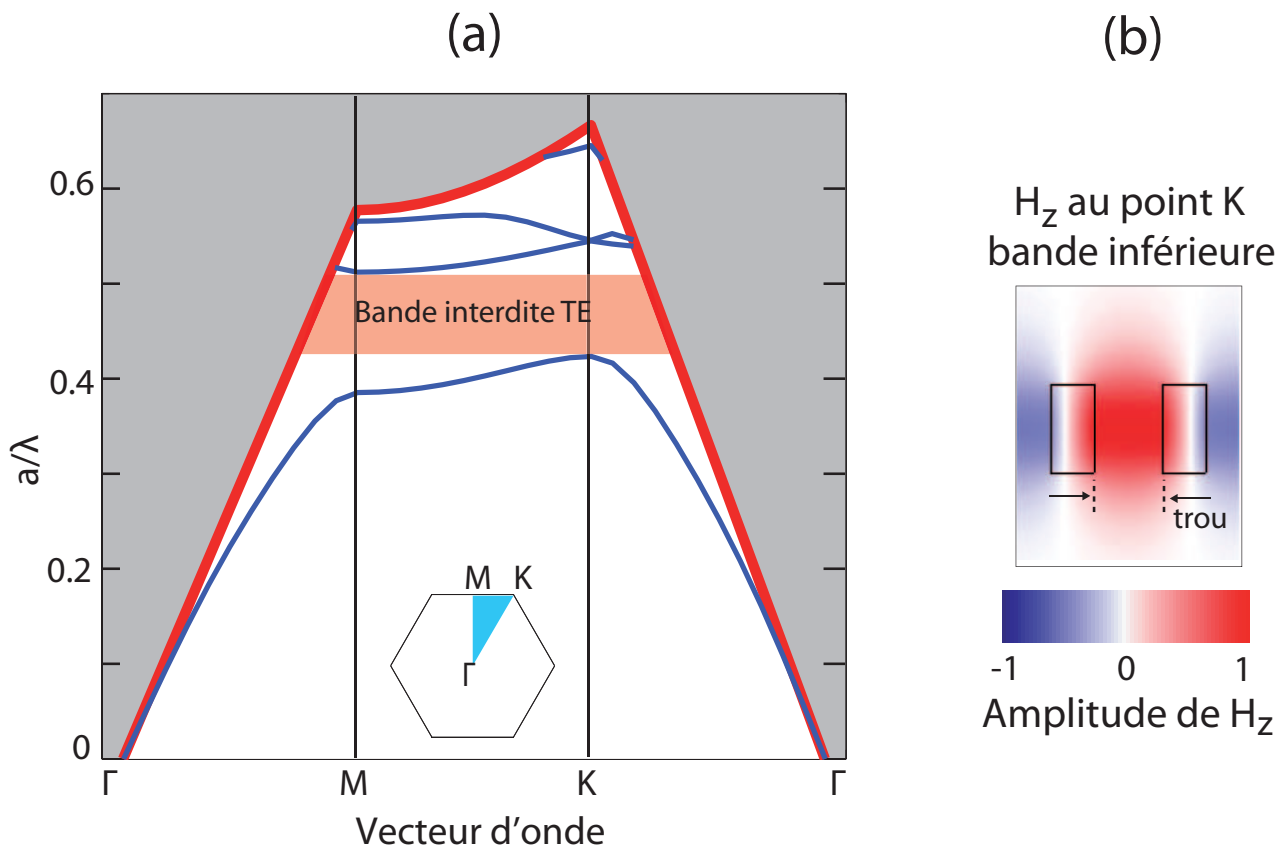

FIGURE 1.11 – (a) Diagramme de bandes d'une membrane pour les modes de polarisation TE, dont les paramètres sont $n = 2,1$, $r = 0,38$ et $e = 0,8a$. La région colorée en gris correspond au cône de lumière et la courbe rouge à la ligne de lumière, au-dessus de laquelle les modes sont radiatifs. Les bandes situées sous la ligne de lumière sont guidés. Une bande interdite incomplète (en rouge) est formée. (b) Distribution du champ $\boldsymbol{H}_z$ pour la bande de plus basse énergie, au point K. Ce mode est guidé et son amplitude décroît de façon exponentielle en dehors de la membrane.

de lumière. Il est également possible de guider un mode dont le vecteur d'onde possède une composante suivant z, s'il satisfait la condition suivante :

$$\omega = c|\boldsymbol{k}| = c\sqrt{k_{xy}^2 + k_z^2} < ck_{xy} \tag{1.26}$$

ce qui implique que k_z soit imaginaire, tel que $k_z = \pm\, i\sqrt{k_{xy}^2 - \omega^2/c^2}$. Dans ce cas, la composante en z du champ électromagnétique décroît de façon exponentielle en dehors de la membrane. La condition (1.26) est équivalente à la condition de réflexion totale interne traduite par la loi de Snell-Descartes à l'interface entre un milieu d'indice fort vers un milieu d'indice plus faible. Ainsi, une onde électromagnétique satisfaisant à la condition (1.26) est guidée sans pertes à travers la membrane par réflexion totale interne.

Ces modes sont situées sous la ligne de lumière dans le diagramme de bandes de la figure 1.11. La figure 1.11(b) représente la distribution du champ magnétique $\boldsymbol{H}_z$ pour la bande de plus

basse énergie, au point K de la 1ZB irréductible. Les rectangles correspondent aux contours de la membrane (l'espace entre les rectangles est donc un trou). L'amplitude du champ magnétique est maximale au centre du trou, et donc un nœud de la distribution du champ électrique y est situé pour abaisser son énergie, conformément au théorème variationnel. Le mode associé à cette distribution est guidé, et son amplitude décroît de façon exponentielle en dehors de la membrane (composante en z évanescente).

On constate également la présence d'une bande interdite, de limite inférieure la fréquence au point K de la bande de plus basse énergie et de limite supérieure celle au point M de la seconde bande de plus basse énergie. Cette bande interdite n'est toutefois pas équivalente à celle formée dans un cristal d'épaisseur infinie. Dans le cas du cristal d'épaisseur infinie, il n'existe aucun mode situé dans la bande interdite. En revanche, dans le diagramme du cristal d'épaisseur finie, on remarque que le cône de lumière pénètre dans la bande interdite pour les vecteurs d'onde colinéaires à $\overrightarrow{\Gamma M}$ et $\overrightarrow{\Gamma K}$. Ainsi, pour une membrane, il existe toujours des modes radiatifs dont les fréquences sont situées dans la bande interdite. Dans cette thèse, la conséquence principale sera qu'un mode de cavité sera toujours couplé à des modes radiatifs, qui correspondent alors à des modes de fuites. Cependant, l'absence de modes guidés entre les points M et K de la 1ZB irréductible permet d'observer la plupart des effets désirés d'une bande interdite (guides d'onde et résonateurs par exemple).

Nous avons expliqué la formation de la bande interdite omnidirectionnelle de polarisation TE dans un cristal photonique bidimensionnel d'épaisseur infinie, en étudiant les régions de la structure où se concentre le champ électromagnétique. Nous avons vu que la plupart des principes déduits de l'étude d'un tel cristal peuvent s'appliquer à un cristal d'épaisseur finie, dans lequel se forme également une bande interdite de polarisation TE. Nous avons également souligné les différences principales induites par la dimension finie du cristal photonique : les modes sont guidés dans une membrane par réflexion totale interne, et la cône de lumière introduit des modes radiatifs dans la bande interdite. Ces observations serviront de socle aux chapitres 3 et 4 de ce manuscrit. Nous terminons ce chapitre par la présentation d'un cristal photonique présentant une périodicité de l'indice dans trois directions de l'espace : l'opale.

1.5 Cristal photonique 3D : l'opale

Dans le chapitre suivant, nous étudions les propriétés de réflexion liées à la bande interdite formée dans une opale. La structure de ces cristaux photoniques 3D particuliers consiste en un empilement de billes de silice dans une matrice d'air, les billes étant organisées en un réseau cubique à faces centrées. Dans cette section, nous définissons la géométrie d'une structure cfc quelconque. Nous introduirons ensuite la zone de Brillouin de la structure cfc, puis nous tracerons le diagramme de bandes d'une opale.

1.5.1 Définition de la structure cfc

Dans une structure cfc, les éléments formant la structure se placent sur les coins et au centre des faces d'un cube, comme représenté sur la figure 1.12(a). Les vecteurs $\boldsymbol{a}_1$, $\boldsymbol{a}_2$ et $\boldsymbol{a}_3$ forment

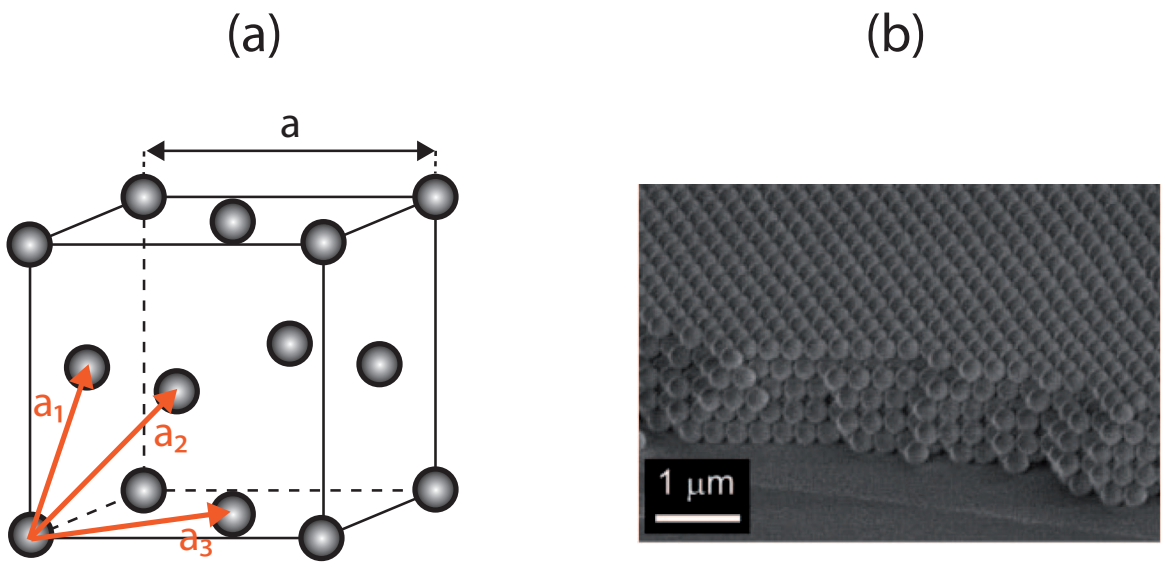

FIGURE 1.12 – (a) Organisation des éléments dans une structure présentant une géométrie cubique à faces centrées (cfc) : les éléments sont situés aux coins et aux centres des faces d'un cube. (b) Image SEM d'une opale où les billes, au contact, sont organisées en une structure cfc. Cette image est empruntée à la référence [28].

les trois vecteurs de la maille primitive du réseau cfc, et s'écrivent :

$$\boldsymbol{a}_1 = a(\hat{\boldsymbol{y}} + \hat{\boldsymbol{z}})/2 \quad \boldsymbol{a}_2 = a(\hat{\boldsymbol{x}} + \hat{\boldsymbol{z}})/2 \quad \boldsymbol{a}_3 = a(\hat{\boldsymbol{x}} + \hat{\boldsymbol{y}})/2$$

où a est le paramètre de maille. Dans une opale, les éléments formant le réseau sont des billes au contact, et on obtient une structure du type de celle présentée sur l'image SEM de la figure 1.12(b)(empruntée à la référence [28]). Les vecteurs de la maille réciproque sont définis par la relation $\boldsymbol{a}_i \cdot \boldsymbol{b}_j = 2\pi\delta_{ij}$, soit :

$$\boldsymbol{b}_1 = (2\pi/a)(-\hat{\boldsymbol{x}} + \hat{\boldsymbol{y}} + \hat{\boldsymbol{z}}) \quad \boldsymbol{b}_2 = (2\pi/a)(\hat{\boldsymbol{x}} - \hat{\boldsymbol{y}} + \hat{\boldsymbol{z}}) \quad \boldsymbol{b}_3 = (2\pi/a)(\hat{\boldsymbol{x}} + \hat{\boldsymbol{y}} - \hat{\boldsymbol{z}})$$

Ces vecteurs forment dans le réseau réciproque une structure cubique centrée, dont la zone de Brillouin est un polygone tronqué, représenté sur la figure 1.13(a), où les lettres désignent les points de haute symétrie. Les coordonnées de ces points sont répertoriées dans l'annexe A. Pour les cristaux photoniques 1D et 2D étudiés précédemment, les vecteurs d'onde pour lesquels nous observons l'ouverture d'une bande interdite sont ceux dont l'extrémité pointe sur les limites de la 1ZB, qui correspondent alors à des lignes (voir figures 1.2(b) et 1.5 pour le cas 1D, 1.2(c) et 1.8(b) De la même façon, à trois dimensions, on observe l'ouverture d'une bande interdite pour les vecteurs d'onde dont l'extrémité pointe sur les *surfaces* de la 1ZB.

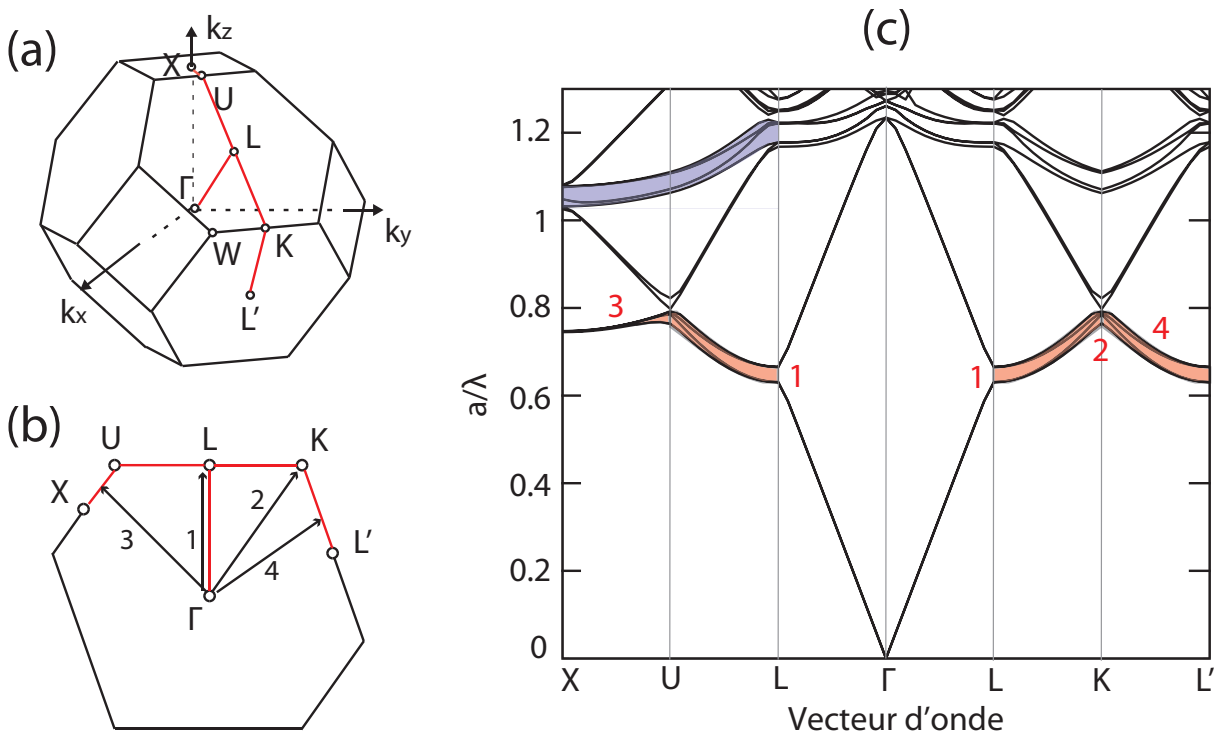

Figure 1.13 – (a) Zone de Brillouin de la structure cfc, qui correspond à un polygone tronqué. Les lettres désignent les points de haute symétrie. La ligne rouge permet de faire le lien avec la section de la zone de Brillouin présentée en (b). Le diagramme de bandes en (c) est tracé en longeant cette ligne rouge. Les numéros sur le diagramme indiquent des positions auxquelles correspondent un vecteur d'onde de même numérotation dans la section de la 1ZB en (b). La zone colorée en bleu correspond à une bande interdite d'ordre élevé. Les zones rouges correspondent aux bandes interdites dans le domaine visible.

1.5.2 Diagramme de bandes d'une opale

Avec le dispositif expérimental que nous utiliserons pour étudier les propriétés optiques de l'opale, nous sonderons la 1ZB suivant une section, représentée sur la figure 1.13(b), où la ligne rouge reliant les points de haute symétrie est la même que celle tracée sur la figure 1.13(a). Comme nous nous limitons à une section, nous ne considérons pas le point de haute symétrie W. Nous traçons alors le diagramme de bandes d'une opale (figure 1.13(c)), en variant la norme et l'orientation du vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ de façon à ce que son extrémité pointe sur la ligne rouge de la figure 1.13(b). Le calcul est effectué pour un indice des billes de $n = 1,46$, l'indice de la silice dans le domaine visible. Sur le diagramme, nous avons numéroté des positions particulières auxquelles correspondent les vecteurs d'onde de même numérotation sur la figure 1.13(b). Nous nous intéressons à l'intervalle $0,6 \leq a/\lambda \leq 1$, qui correspond au domaine 480 nm$\leq \lambda \leq$ 800 nm, l'étendue spectrale accessible par notre dispositif. Nous considérons donc les bandes interdites comprises dans cet intervalle (en rouge), et non les bandes interdites formées à des énergies supérieures (dont une est colorée en bleu).

Nous commençons la description du diagramme en suivant la ligne rouge du point Γ au point

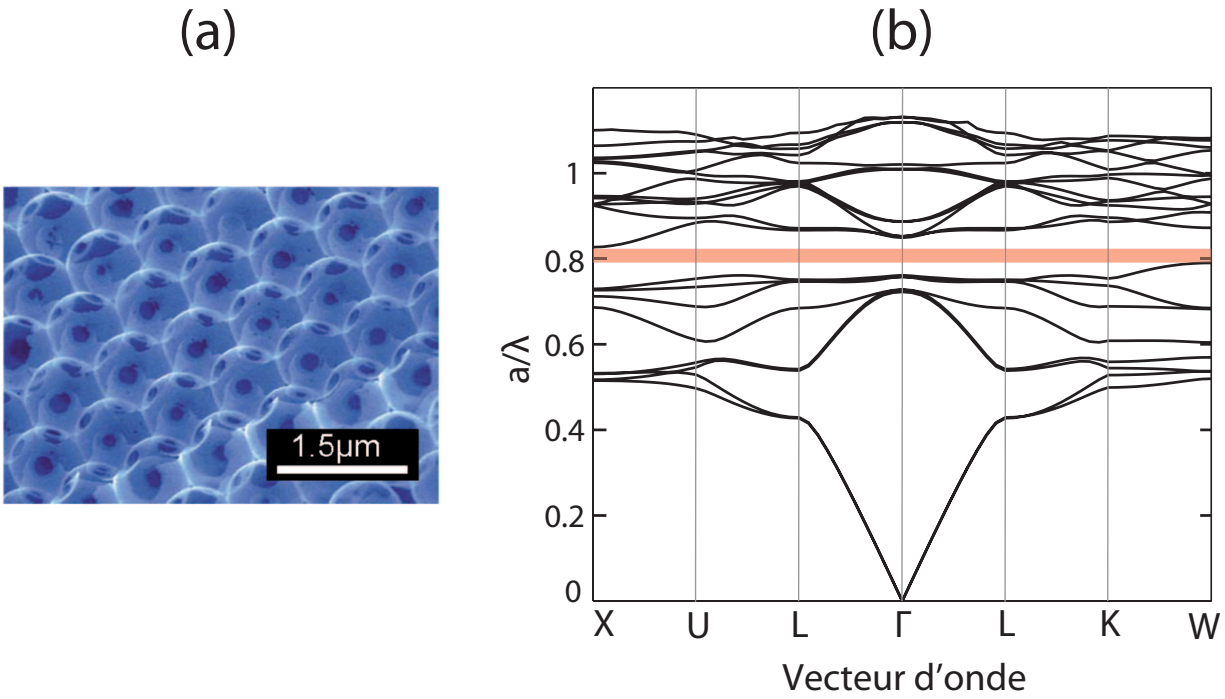

FIGURE 1.14 – (a) Image SEM d'une opale inverse, empruntée à la référence [29]. (b) Diagramme de bandes d'une opale inverse, l'indice du milieu hôte étant de $n = 1,46$. Une bande interdite omnidirectionnelle (en rouge) est formée entre les 8ème et 9ème bandes.

L de la 1ZB. Le vecteur d'onde correspond alors à un vecteur $\boldsymbol{k} = 0$ dont la norme augmente progressivement jusqu'à $\boldsymbol{k} = \overrightarrow{\Gamma L}$. On remarque que la dispersion des deux premières bandes est linéaire. En effet, la norme des vecteurs d'onde considérés est faible, donc la longueur d'onde des ondes électromagnétiques correspondantes élevée par rapport à la périodicité de l'indice présentée par la structure. Ces ondes se propagent alors comme dans un milieu massif d'indice uniforme. Au point L (vecteur 1 sur la figure 1.13(b)), l'extrémité du vecteur $\boldsymbol{k}$ est au contact avec une surface de la 1ZB, et on observe la formation d'une bande interdite entre les deux premières bandes à la fréquence réduite $a/\lambda \approx 0,65$.

Nous longeons ensuite la surface de la 1ZB vers les points U (à gauche du point L sur le diagramme) et K (à droite du point L). Les bandes pour les deux directions suivies sont symétriques, les points U et K étant symétriques par rapport au point L. Cette symétrie est cependant perdue aux points U et K (vecteur 2 sur la figure 1.13(b)), les plans de la 1ZB adjacents à ces points étant alors différents (voir figure 1.13(a)). Pour les deux chemins suivis, on constate que la position en fréquence du centre de la bande interdite formée au point L, *se déplace* vers les hautes fréquences (ie les basses longueurs d'onde). Les bandes interdites formées pour des orientations différentes du vecteur $\boldsymbol{k}$ ne sont pas assez larges pour se recouvrir toutes et former une bande interdite omnidirectionnelle. On parle alors de *bande interdite incomplète*. Cette observation est au cœur de la physique des opales, pour lesquelles l'étude des bandes interdites s'effectue par la caractérisation optique de ce déplacement.

Nous longeons enfin la surface de la zone de Brillouin du point U au point X (à gauche du point U sur le diagramme). Le vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ pointe alors sur une surface différente de la

1ZB (vecteur 3 sur la figure 1.13(b)), et on observe la bande interdite se fermer suivant cette direction. En revanche, du point K au point L' (à droite du point K), la bande interdite continue d'exister, puisque le vecteur d'onde pointe sur une surface de la 1ZB (vecteur 4 sur la figure 1.13(b)) identique à celle longée du point L au point K. La bande interdite est donc identique par symétrie à celle suivie précédemment, mais est ouverte dans une direction différente de la 1ZB.

Nous avons montré que des bandes interdites existent dans une opale, mais qu'elles ne sont pas suffisamment larges pour former une bande interdite omnidirectionnelle. Nous concluons ce premier chapitre en présentant une opale constituée de pores dans un matériau diélectrique, que l'on peut voir comme des billes d'air dans une matrice d'indice élevé. Cette structure peut présenter une bande interdite complète à trois dimensions.

La figure 1.14(a) représente une image SEM (empruntée à la référence [29]) d'une telle structure, et la figure 1.14(b) un diagramme de bandes calculé exactement de la même façon que celui de la figure 1.2(c), mais en échangeant l'indice des billes avec celui de la matrice (donc billes d'air dans un milieu hôte d'indice $n = 1,46$). On observe la formation d'une bande interdite omnidirectionnelle (en rouge) entre les $8^{\text{ème}}$ et $9^{\text{ème}}$ bandes.

1.6 Conclusion

Nous avons expliqué les mécanismes de formation de la bande interdite dans des cristaux photoniques dont la périodicité s'étend suivant une, deux ou trois directions. En particulier, nous avons présenté le réseau triangulaire de trous gravés dans une couche diélectrique suspendue. La connaissance des propriétés de la bande interdite formée dans cette structure constituera un socle théorique lorsque nous étudierons les cavités de cristal photonique planaire aux chapitres 3 et 4. Quant aux opales, nous les étudions dès le chapitre suivant en explorant les propriétés de la bande interdite de cette structure par réflectométrie.

Chapitre 2

Propriétés optiques d'une opale

L'opale est une structure constituée de l'empilement organisé de billes diélectriques. L'alternance entre l'indice élevé des billes et celui plus faible du milieu hôte entre les billes confère à l'opale une structuration de l'indice à trois dimensions. Une bande interdite est alors formée et donne lieu à de nombreuses études. Certaines équipes se concentrent sur les propriétés de la lumière réfléchie qu'elle apporte [30, 31]. D'autres manipulent sa largeur en jouant sur l'indice du milieu hôte pour réaliser des guides d'onde sélectifs [32]. Des travaux de couplages à des émetteurs infiltrés ont également été réalisés [16, 33], mettant en évidence une inhibition de l'émission. L'inclusion d'un défaut contrôlé dans la structure de l'opale et dont le mode résonant correspond à celui de l'émetteur, permet au contraire d'obtenir une exaltation de l'émission [34]. Des travaux sur une technique d'inclusion d'un tel défaut sont actuellement en cours dans notre équipe.

Une recherche soutenue est portée sur la compréhension des propriétés optiques de l'opale. En effet, de nombreuses questions concernant l'interaction de la lumière avec ce cristal photonique restent irrésolues. Deux points de vue sont couramment adoptés. Les propriétés de réflexion sont interprétées soit par une approche de bandes interdites et l'étude du diagramme de bandes de l'opale [35–37], soit par la considération des interférences sur les différentes familles de plans constituant sa structure [38, 39]. La question est alors de savoir comment utiliser ces différentes approches pour comprendre ces propriétés optiques (diffraction multiple, polarisation) et extraire des mesures de réflectométrie une caractérisation de l'opale.

Ce chapitre a pour objectif d'expliquer certaines propriétés optiques de l'opale jusqu'ici mal comprises. La première partie de ce chapitre présente la technique de fabrication de notre opale d'étude, ainsi que la caractérisation de sa structure par diverses techniques. Dans la seconde partie, nous effectuons des mesures optiques par goniométrie, et discutons des résultats obtenus par la comparaison de deux modèles : la loi de Bragg et le diagramme de bandes. Nous caractérisons ensuite l'opale par un ajustement par une loi de Bragg, méthode généralement employée dans la littérature, montrons ses limites, et proposons une méthode alternative de caractérisation. Nous répondons enfin à deux questions irrésolues dans la littérature : le mécanisme d'observation aux angles de détection spéculaires du pic de réflexion secondaire, et l'extinction du pic de réflexion de polarisation p à un angle proche de l'angle de Brewster.

2.1 Fabrication

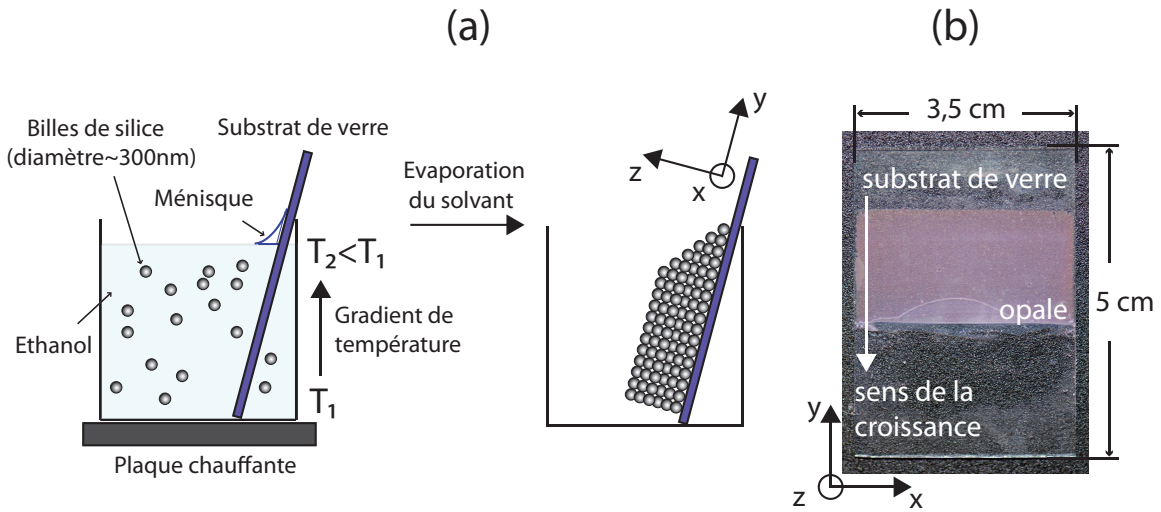

FIGURE 2.1 – (a) Procédé de fabrication d'une opale par convection : les billes de silice, en suspension dans une solution d'éthanol, se déposent par capillarité et de façon auto-organisée sur le substrat au niveau du ménisque. Un gradient de température, imposé par la plaque chauffante sur laquelle est posé le cristallisoir, permet de créer un flux continu de billes vers le ménisque et d'éviter la sédimentation des billes au fond de la fiole. L'opale se forme à mesure que le solvant s'évapore. (b) Photographie d'une opale déposée sur un substrat de verre. La couleur violette est la manifestation de la structure à trois dimensions du cristal. La flèche indique le sens de la croissance.

Nous décrivons dans cette section le principe du procédé ayant servi à fabriquer l'opale étudiée dans ce chapitre. Différentes techniques permettant de fabriquer des opales ont été étudiées et optimisées. Des opales de qualité cristalline remarquable ont été fabriquées par sédimentation libre [40–42] ou contrôlée sur substrat portant un motif [43, 44]. La méthode de transfert de couches de Langmuir-Blodgett permet de fabriquer des opales couche par couche, par transfert des films formés par les particules de la surface du solvant vers le substrat [45–47]. Différentes méthodes convectives, par échauffement isotherme du solvant à température proche de la température d'ébullition [48] ou par évaporation verticale [49, 50, 50–52] induite par un gradient de température [53] ont permis de fabriquer des opales pour lesquelles l'ordre cristallin est maintenu sur toute la surface de l'échantillon. Cette dernière méthode est celle utilisée par l'équipe de Pham Thu Nga de l'*Institute of Materials Science* de Hanoï, qui a synthétisé l'opale étudiée dans ce chapitre.

Notre opale est fabriquée à partir de billes de silice colloïdales en utilisant la méthode d'auto-assemblage développées par Jiang *et al.* [50]. La figure 2.1(a) illustre le principe du procédé.

Les billes de silice sont produites par la méthode de Stöber [54], modifiée afin d'obtenir des billes larges [55] de quelques centaines de nanomètres. Les billes obtenues sont monodisperses à moins de 3%. Un substrat de verre est placé dans un cristallisoir (100 mL) qui contient les billes de silice dans une solution d'éthanol, la concentration étant au plus de 10 wt.%(pourcentage massique). Le substrat est incliné de 15° par rapport à la verticale.

Les billes se déposent au niveau du ménisque entre le substrat et la suspension colloïdale au fur et à mesure que le solvant s'évapore. Le processus de cristallisation est favorisé en appliquant un gradient de température [53] (entre $T_1 = 43°C$ et $T_2 = 27°C$, voir figure 2.1(a)) à la suspension colloïdale. Un mouvement de convection est alors imprimé aux billes, ce qui permet d'empêcher la sédimentation des billes dans le fond du cristallisoir et de créer un flux continu de billes vers le ménisque. L'application d'un gradient de température permet aussi de contrôler la vitesse d'évaporation du solvant, cruciale pour un assemblage régulier des billes.

Une fois l'opale préparée, elle sèche à température ambiante. La figure 2.1(b) est une photographie d'une opale une fois la synthèse achevée. Les dimensions du substrat de verre, transparent, sont $5 \times 3,5 \times 0,2\,\text{cm}$. Le reflet violet obtenu est une manisfestation de la structure à trois dimensions du cristal et dépend de l'angle d'observation (iridescence). La flèche indique le sens de la croissance.

2.2 Caractérisation structurelle

La méthode d'auto-assemblage par convection décrite ci-dessus permet, en quelques heures, d'obtenir un assemblage compact de billes dans la structure cubique à faces centrées (cfc), que nous avons décrite brièvement à la fin du chapitre 1. Dans cette section, nous commentons plus en détails la structure cfc compacte, c'est-à-dire lorsque les éléments de la structure sont au contact, ce qui est le cas des billes constituant l'opale. Puis nous caractériserons l'opale par microscopie à force atomique (AFM), ellipsométrie et profilométrie.

2.2.1 Définition de la structure cubique à faces centrées

Dans une structure cfc, les éléments formant la structure se placent sur les coins et au centre des faces d'un cube, comme représenté sur la figure 2.2(a). Les vecteurs $\boldsymbol{a}_1$, $\boldsymbol{a}_2$ et $\boldsymbol{a}_3$ forment les trois vecteurs de la maille primitive du réseau cfc. Dans cette structure, il existe différentes familles de plans, qui se démarquent les unes des autres par leur orientation et leur distance interréticulaire (distance entre chaque plan d'une même famille). Pour les désigner, nous introduisons la nomenclature de Miller [19] en parlant de familles de plans $(hk\ell)$, où h, k, et ℓ sont des entiers et correspondent à l'inverse de l'abscisse des points d'intersection de ces plans avec les arêtes du cube de la figure 2.2(a), le paramètre de maille a correspondant à l'unité.

Les vecteurs $\boldsymbol{a}_1$ et $\boldsymbol{a}_2$ définissent alors la famille de plans (111), qui correspondent aux surfaces colorées sur la figure 2.2(a). Ce sont les plans horizontaux de l'opale. Dans ces plans, les billes sont organisées en un réseau triangulaire (voir figure 2.2(b)). La figure 2.2(c) représente deux plans (111) superposés, que l'on nomme A et B. Le plan B est décalé par rapport au plan A, de sorte que les billes du plan B se déposent dans les creux du plan A. La figure 2.2(c) représente trois plans (111) superposés. Le troisième plan, le plan C, est décalé par rapport aux plans A et B. Si l'on ajoutait un quatrième plan, les billes se positionneraient dans la configuration A, et dans les configurations B et C pour un cinquième et sixième plan, et ainsi de suite. Cet empilement de type ABCABC... est propre à la structure cfc. Si on appelle D le

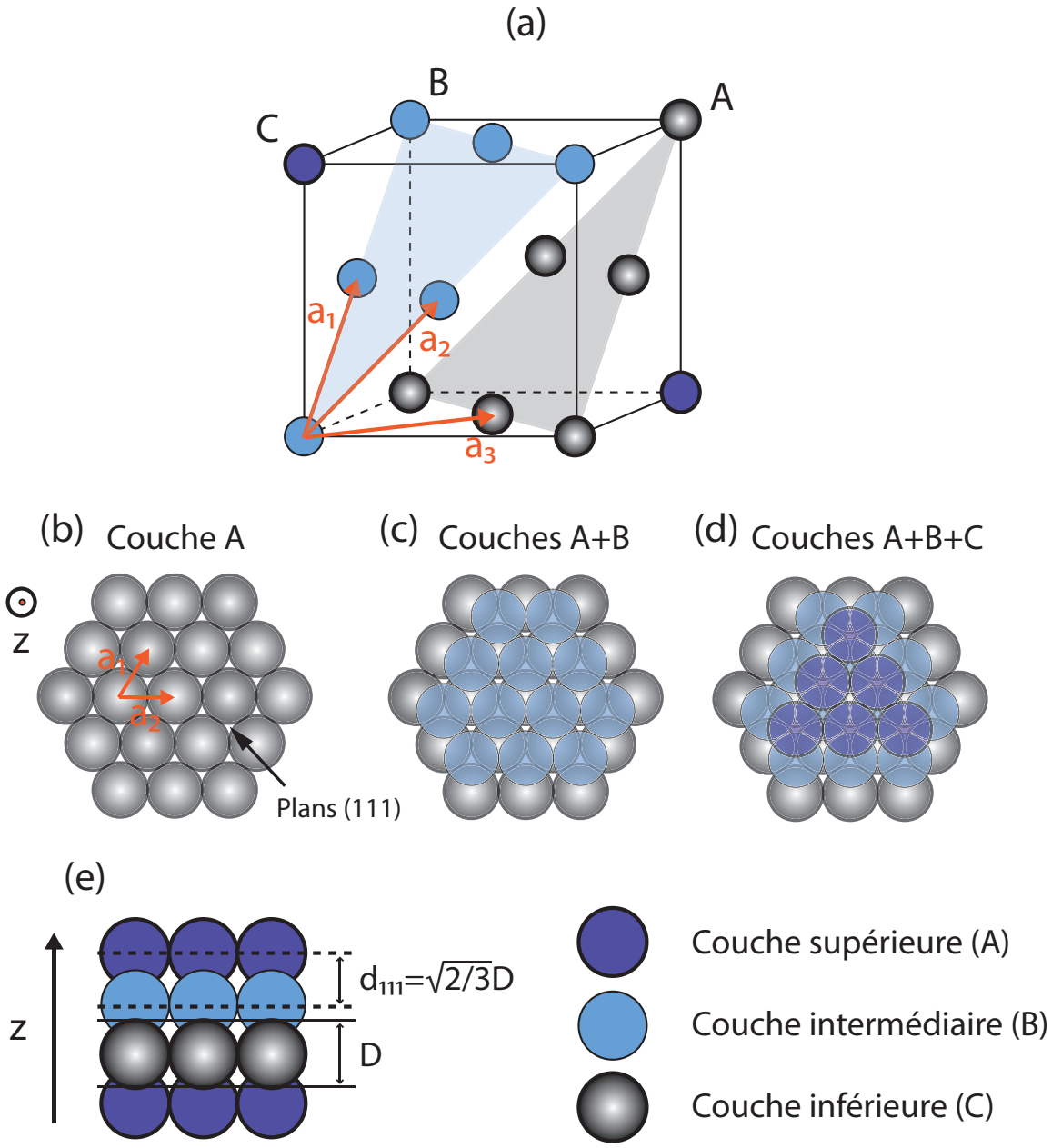

FIGURE 2.2 – (a) Structure cfc : répartition des billes sur un cube, les plans (111) étant représentés par les surfaces colorées. (b) (c) et (d) Structure cfc : disposition des billes en un réseau triangulaire, chaque plan de billes correspondant à un plan (111). (e) Section le long d'un axe du cube cfc d'un réseau de billes. La distance interréticulaire entre les plans (111) vaut $d_{111} = \sqrt{2/3}D = 0,816D$.

diamètre des billes, la distance entre deux plans (111) est $d_{111} = \sqrt{2/3}D$ (voir figure 2.2(e)).

La raison pour laquelle les billes se positionnent en un réseau cfc lors du procédé d'auto-assemblage est une question intéressante. D'un point de vue thermodynamique, la différence d'énergie entre la structure cfc et la structure hexagonale compacte (empilement de type ABAB...) par exemple est très faible [56] et les deux structures sont aussi stables énergétiquement l'une que l'autre. Le groupe de David J. Norris a proposé [52] puis validé par un calcul théorique [57] l'explication suivante : lorsque l'opale est dans la configuration AB (figure 2.2(c)), le troisième plan a la possibilité de se positionner suivant les configurations A ou C. La configuration A correspond sur la figure 2.2(b) à une position des billes sur les interstices formés par les billes de la couche B, mais obstrués par celles de la couche A. La configuration C correspond aux interstices non obstrués par les billes de la couche A, le flux de solvant y est donc plus fort. Ainsi, les billes du troisième plan sont aspirées par le flux du solvant à travers les interstices dont les positions correspondent à celles de la configuration C, et l'empilement de type ABCABC... est favorisé.

2.2.2 Caractérisation AFM

La figure 2.3(a) représente une image AFM 5x5 μm de la surface de l'opale d'étude, réalisée en collaboration avec Delphine Coursault et Emmanuelle Lacaze de l'équipe « Physico-chimie des surfaces fonctionnelles » de l'INSP. On observe un réseau triangulaire correspondant au plan (111) à la surface de l'échantillon. Le relief est bien sondé par la pointe AFM, à l'exception des interstices entre les billes, pour lesquels la pointe est trop large. On n'observe pas de défauts du réseau à cette échelle.

La figure 2.3(b) représente le réseau triangulaire réciproque obtenu par la transformée de Fourier de l'image 2.3(a). Le paramètre de maille du réseau direct, qui est égal au diamètre des billes, est déterminé en mesurant la maille du réseau réciproque. Par exemple, on mesure entre les points 1 et 2 sur la figure 2.3(b) $|\boldsymbol{k}| = 2|\boldsymbol{b}_1| = 43\,\mu\text{m}^{-1}$ en unités de $2\pi/\lambda$, où $\boldsymbol{b}_1 = (2\pi/a)(\hat{\boldsymbol{x}} + \hat{\boldsymbol{y}}/\sqrt{3})$ est l'un des deux vecteurs de la maille réciproque. Le paramètre de maille du réseau direct est alors donné par la relation $a = (8\pi)/(\sqrt{3}|\boldsymbol{k}|) = D$ et on trouve $D = 338\,\text{nm}$. Compte tenu des imprécisions liées à la technique de caractérisation par AFM (largeur de la pointe, taille de la zone sondée), nous estimons à $\pm 10\,\text{nm}$ l'erreur sur cette mesure.

2.2.3 Ellipsométrie

Une mesure d'ellipsométrie a été réalisée sur l'échantillon, en collaboration avec Nicolas Guth et Bruno Gallas de l'équipe « Croissance et propriétés de systèmes hybrides en couches minces » de l'INSP. Cette technique est fondée sur le changement d'état de polarisation de la lumière par réflexion sur la surface plane de l'échantillon, et la mesure ici a pour but de déterminer l'indice effectif et l'épaisseur de l'opale, considérée comme un milieu homogène, par l'analyse des franges d'interférences constructives entre les deux interfaces air/opale et opale/verre. Le faisceau est pointé au centre de l'échantillon, où seront effectuées toutes les mesures optiques décrites dans la suite de ce chapitre. La surface de l'opale est très diffusante

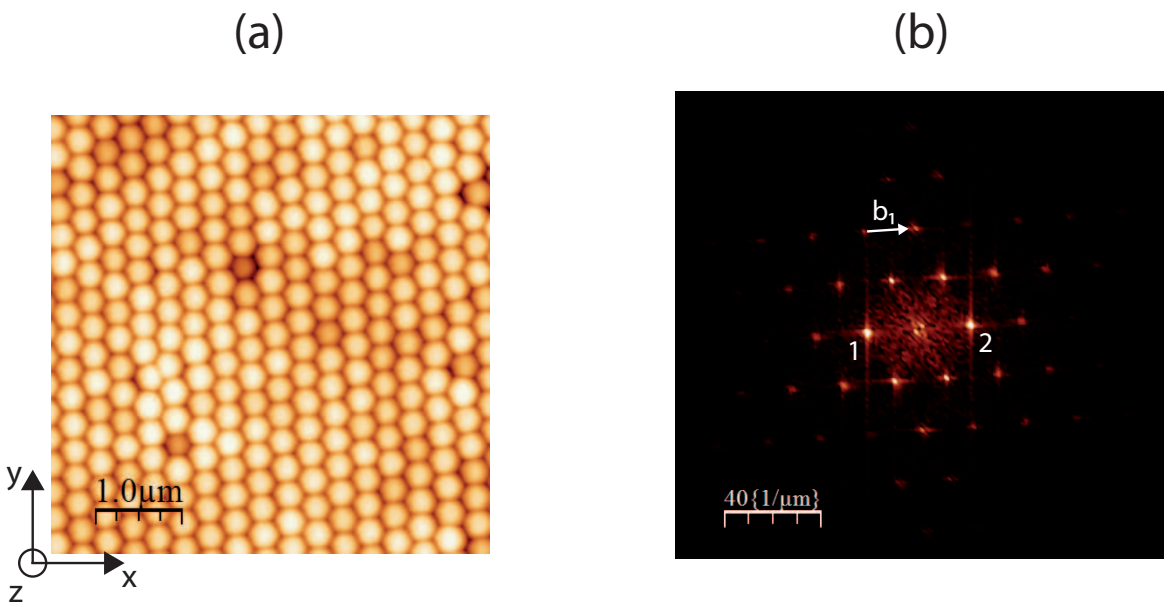

FIGURE 2.3 – (a) Image AFM de la surface de l'opale d'étude. Les billes sont organisées en un réseau triangulaire. (b) Transformée de Fourier de (a). On mesure entre les points 1 et 2 un vecteur d'onde $\boldsymbol{k} = 2\,\boldsymbol{b}_1$ où $\boldsymbol{b}_1$ est un vecteur de la maille réciproque. On en déduit la périodicité du réseau dans l'espace réel et donc le diamètre des billes $D = 338\,\text{nm}$.

et le signal mesuré faible, aussi la mesure est effectuée aux deux angles $\theta = 65°$ et $75°$ (angles rasants) afin d'obtenir une réflectivité maximale.

Le résultat de la mesure correspond aux courbes noires sur la figure 2.4(a). Les interférences observées sont liées à l'indice effectif et à l'épaisseur de l'opale et un ajustement permet de déterminer ces deux paramètres. Deux types d'ajustements sont appliqués :

- le premier se fait par la formule empirique de Cauchy et définit l'indice par $n = A + B/(\lambda^2 + C/\lambda^4)$ où A, B et C sont les constantes à ajuster. Il correspond aux courbes bleues sur la figure 2.4(a).
- le second est de type Maxwell-Garnett [58]. L'indice effectif $n = \sqrt{\epsilon}$ est donné par la relation :

$$\frac{\epsilon - \epsilon_h}{\epsilon + Y\epsilon_h} = f\frac{\epsilon_{SiO_2} - \epsilon_h}{\epsilon_{SiO_2} + Y\epsilon_h}$$

  où f est le facteur de remplissage de la structure, $\epsilon_{SiO_2} = n^2_{SiO_2}$ la permittivité diélectrique de la silice, ϵ_h la permitivité diélectrique du milieu hôte (ici l'air) et Y le facteur d'écrantage (ou de dépolarisation) [59] qui est un nombre compris entre 0 et 1 et permet de décrire la forme des éléments composant la structure (nous prenons $Y = 1/3$, la valeur décrivant le mieux les sphères). On fixe $\epsilon_h = 1$, la permitivité diélectrique de l'air et on utilise la courbe de dispersion classique de la silice pour ϵ_{SiO_2}, le facteur de remplissage f étant la valeur ajustée. L'ajustement de type Maxwell-Garnett correspond aux courbes rouges sur la figure 2.4a.

Nous n'avons pas ajouté de terme d'absorption, qui est un moyen de prendre en compte

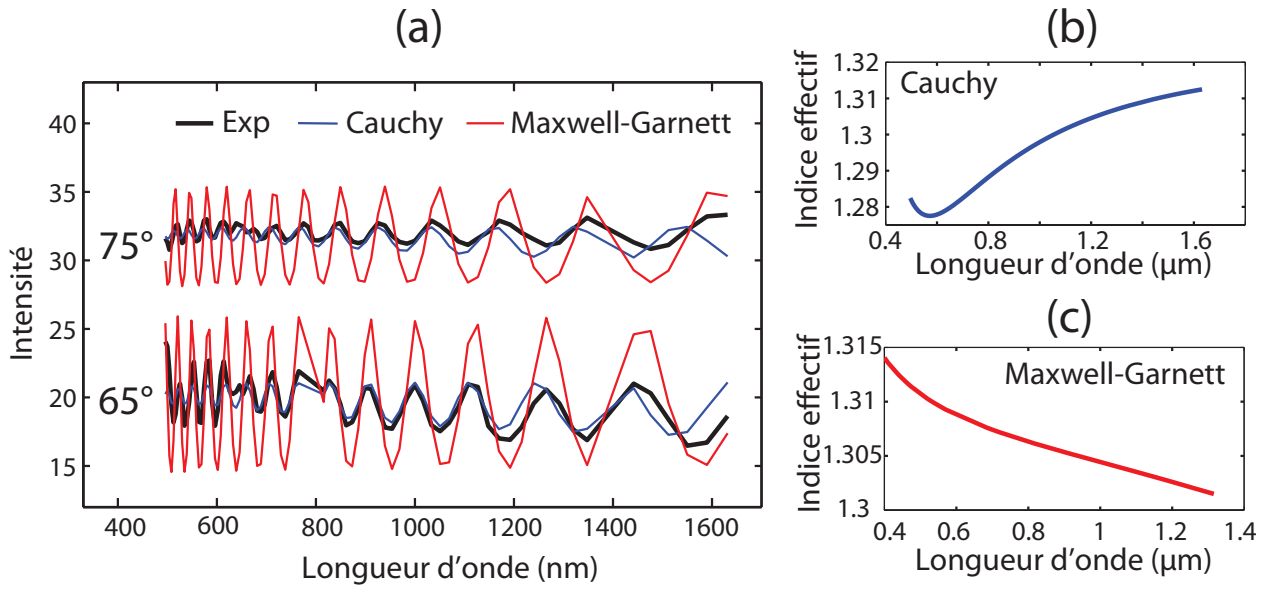

FIGURE 2.4 – (a) Franges d'interférence aux angles rasants 65° et 75° mesurées à l'ellipsomètre sur notre opale (en noir) et ajustements par les lois de Cauchy (en bleu) et de Maxwell-Garnett (en rouge) (b) et (c) Courbes de dispersion de l'indice obtenues par ajustement de Cauchy et Maxwell-Garnett respectivement. Dans le domaine visible, l'indice vaut environ 1,28 et 1,31 respectivement.

la diffusion mais ajouterait une composante imaginaire à la constante diélectrique de la silice, alors qu'elle est très peu absorbante dans le visible. La conséquence est un mauvais ajustement de l'amplitude des oscillations par la formule de Maxwell-Garnett. Par contre, la position des franges d'interférences est bien décrite, avec un léger décalage pour l'ajustement de Cauchy. Les courbes de dispersion de l'indice obtenues par ajustements de Cauchy et Maxwell-Garnett sont représentées sur les figures 2.4(b) et (c) respectivement.

Les indices obtenus dans le domaine visible sont respectivement $n \approx 1,28$ et $n \approx 1,31$, et les épaisseurs de l'opale associées $e = 5,6\,\mu$m et $e = 5\,\mu$m. Cependant, l'ajustement de Cauchy donne un indice croissant avec la longueur d'onde, contrairement à la dispersion classique de la silice, et ne semble donc pas pertinent pour décrire la dispersion de l'indice de notre échantillon. L'ajustement de Maxwell-Garnett est plus satisfaisant, puisqu'il donne un indice décroissant avec la longueur d'onde, avec une valeur ajustée du facteur de remplissage $f = 0,71$, proche de la valeur théorique $f = 0,74$ de la structure cfc compacte.

Les mesures d'ellipsométrie sont fiables pour des longueurs d'onde quatre fois supérieures à la taille des microstructures constituant l'échantillon analysé [60]. Pour des longueurs d'onde inférieures, la diffusion est présente et ajoute une erreur importante aux mesures. Le diamètre des billes est $D = 338 \pm 10\,$nm d'après les mesures AFM, ce qui implique que nous devons rester prudents quant aux valeurs déterminées plus haut. Cependant, on note que les deux ajustements donnent des valeurs relativement similaires. Dans la suite de ce chapitre, nous utiliserons la valeur d'indice $n_{eff} = 1,31$ déterminée par ajustement de Maxwell-Garnett comme point de départ pour nos calculs théoriques. Elle sera comparée à la valeur de n_{eff} obtenue par réflectométrie optique.

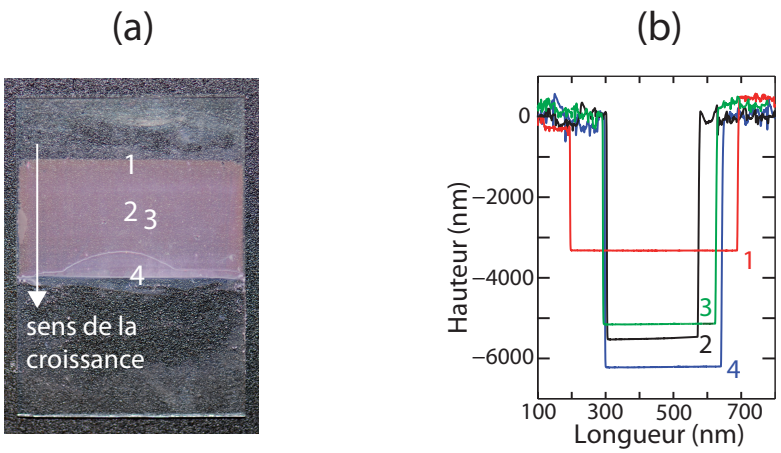

FIGURE 2.5 – (a) Photographie de l'échantillon, où l'on voit la couche colorée formée par l'opale sur le substrat de verre. Les numéros désignent les positions où les entailles ont été effectuées pour les mesures de profilométrie.(b) Profils de l'opale mesurés au profilomètre. Les numéros correspondent aux positions indiquées sur la figure (a). L'opale présente un gradient d'épaisseur des points 1 à 4, dans la direction de la croissance.

2.2.4 Profilométrie

Des mesures de profilométrie sont réalisées au points indiqués sur la figure 2.5(a). En ces points, on fait avec une pince une entaille d'environ 1 mm, suffisamment large et profonde pour permettre à la pointe du profilomètre d'atteindre le substrat. Ce type de caractérisation étant destructif, ces mesures ont été effectuées après l'étude optique de l'opale. Le point 1 est situé sur le bord supérieur de l'opale et le point 4 sur le bord inférieur. Les points 2 et 3 sont situés au centre de l'opale (à quelque millimètres du point de mesure à l'ellipsomètre) et correspondent à des mesures effectuées sur la même entaille à quelques micromètres d'écart. Les courbes représentant la hauteur en fonction de la distance parcourue aux points 1, 2, 3 et 4 sont représentées sur les figures 2.5(b) (c) (d) et (e) respectivement. On mesure des points 1 à 4 une épaisseur $e_1 = 3,2\,\mu$m, $e_2 = 5,5\,\mu$m, $e_3 = 5,2\,\mu$m et $e_4 = 6,2\,\mu$m. L'opale présente donc un gradient d'épaisseur, qui s'explique par le procédé de fabrication par convection. Au fur et à mesure que le solvant s'évapore, la concentration de billes dans le ménisque augmente et l'opale en devient d'autant plus épaisse.

Les mesures optiques de ce chapitre ont été effectuées au centre de l'opale. Les valeurs mesurées dans cette zone sont $e_2 = 5,5\,\mu$m et $e_3 = 5,2\,\mu$m, la différence entre les deux mesures illustrant l'épaisseur inhomogène de l'opale. En prenant la valeur du diamètre des billes $D = 338$ nm et la distance entre les plans (111) $d_{111} = \sqrt{2/3}D$, on estime le nombre de couches dans la zone centrale de l'opale à $NB_{plans} = 19 \pm 1$ couches.

Pour conclure cette section, les valeurs des paramètres D, n et e obtenues sont rassemblées dans le tableau 2.1. Ces valeurs seront comparées avec celles issues des mesures optiques, effectuées à l'aide du dispositif de goniométrie que nous décrivons dans la section suivante.

	Diamètre des billes (nm)	Epaisseur (μm)	Indice effectif
AFM	338 ± 10		
Profilométrie		5,2 et 5,5	
Ellipsométrie (Cauchy)		5,6	1,28
Ellipsométrie (MG)		5	1,31

Table 2.1 – Paramètres de l'opale déterminés par AFM, profilométrie et ellipsométrie

2.3 Description du dispositif

Une méthode appropriée pour caractériser une opale est la goniométrie optique. En effet, pour étudier l'interaction d'une onde électromagnétique avec une structure périodique, il faut que la période de la structure et la longueur d'onde de l'onde soient du même ordre de grandeur. Dans notre cas, le diamètre des billes de silice est de l'ordre de quelques centaines de nanomètres et les longueurs d'onde dans le visible sont adaptées. La goniométrie permet d'étudier l'interaction de la lumière avec l'opale en analysant le spectre de la réflexion spéculaire sur la surface de l'opale [61, 62] ou la transmission à travers l'opale [38, 39]. Les mesures de réflexion sont applicables à tous les types d'opale [1] et nous analysons dans ce manuscrit ce type de mesures. Le schéma du dispositif est présenté sur les figures 2.6 et 2.7.

L'échantillon est placé sur un plateau goniométrique, réglable en hauteur et en angle (suivant trois directions angulaires). Il est illuminé à différents angles d'incidence par une source halogène Micropack HL-2000-FSHA dont le spectre s'étend de 400 à 880 nm. La source est fibrée (diamètre de cœur de la fibre de $r = 600\,\mu$m, ouverture numérique 0,22) et collimatée en sortie de fibre par une lentille de focale $f = 12,7$ mm (voir figure 2.6(a) et (b)). L'ouverture numérique de la fibre et la focale de la lentille donnent alors une largeur du faisceau de 6 mm avec une divergence de $\delta = \arctan(r/f) = 1,4°$. La source est ensuite filtrée spatialement par un diaphragme de diamètre $d_1 = 0,6$ mm placé juste après le collimateur de la fibre, afin d'illuminer l'opale sur une surface plus petite. Le faisceau illumine avec un angle d'incidence θ (défini par rapport à la normale à la surface) l'échantillon placé à 3 cm du diaphragme, et le diamètre du faisceau à la surface de l'opale est alors de 2 mm pour $\theta = 20°$. Pour les mesures résolues en polarisation, un polariseur est placé sur le diaphragme de la fibre éclairante.

La lumière réfléchie est collectée par une seconde fibre collimatée symétrique à la première (voir figure 2.7(a)). La divergence du faisceau étant de $\delta = 1,4°$ et le trajet entre les fibres illuminatrice et de détection étant de $d = 6$ cm, la taille du faisceau à l'entrée de la fibre de détection mesure plus de 3 mm. Nous plaçons alors un diaphragme de diamètre $d_2 = 1$ mm à l'entrée de la fibre de détection. Ce diaphragme nous permet de collecter la réflexion spéculaire avec une résolution angulaire de $\arctan((d_2 - d_1)/d) \approx 0,5°$. Les fibres sont montées sur des bras mécaniques rotatifs permettant une sélection des angles d'incidence et de collection θ avec une précision de 0,1°. L'angle d'illumination θ minimal est de 20°, angle au-dessous duquel les bras se touchent.

La lumière collectée est analysée par un spectrophotomètre à capteur CCD (Charged Cou-

1. Par exemple, les opales fabriquées par sédimentation sont très épaisses et il est difficile de mesurer leur transmission.

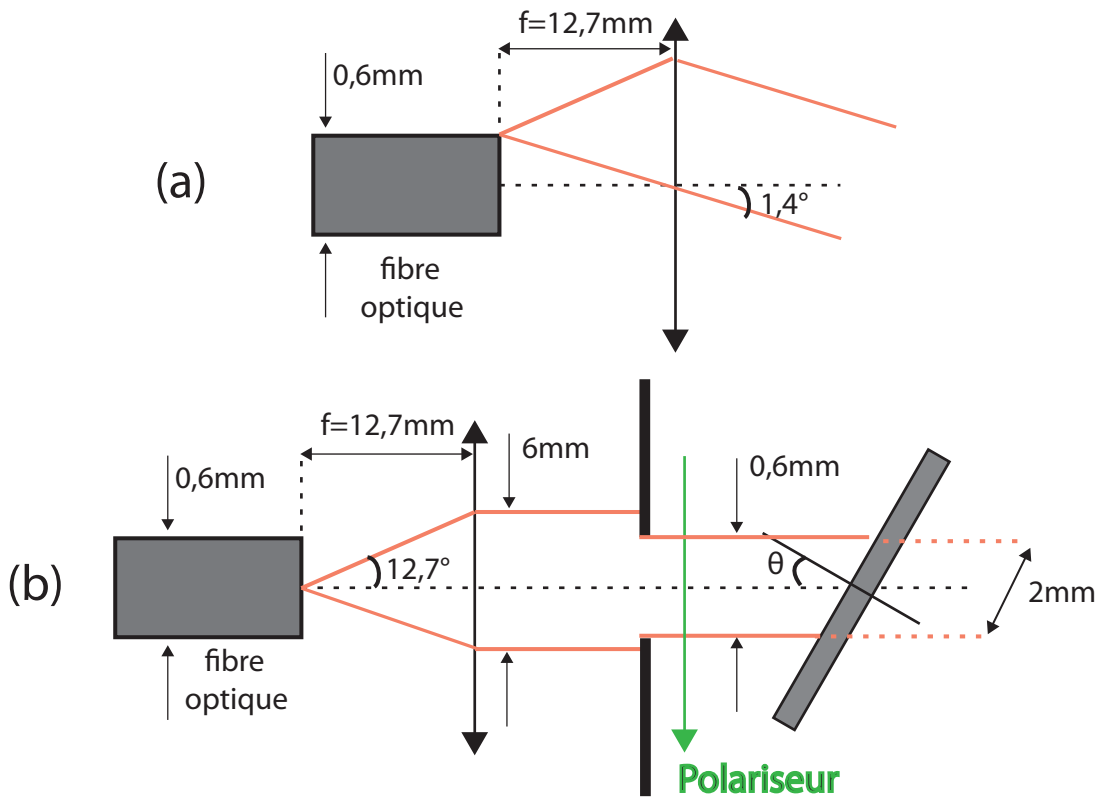

FIGURE 2.6 – Description du dispositif de goniométrie optique. (a) et (b) Schémas des optiques associées à la fibre éclairante. (b) Schéma de la mesure de la réflexion spéculaire sur une opale. (c) Placement de l'opale, orientée de façon à ce que le plan d'incidence contienne les points de haute symétrie U, L et K.

pled Device) de résolution $\delta\lambda = 1,5\,\text{nm}$. La normalisation du spectre est effectuée par le spectre de la lampe halogène obtenu sans échantillon en plaçant les deux fibres face à face, c'est-à-dire avec $\theta = 90°$. Ceci permet de s'affranchir du spectre de la source, de la bande passante des différentes optiques et de la réponse spectrale du détecteur, et permet d'obtenir uniquement la réponse spectrale de l'échantillon. Le coefficient de réflexion obtenu est alors proportionnel au coefficient de réflexion absolu, en considérant la diffusion indépendante de la longueur d'onde. Les mesures résolues en polarisation sont normalisées de la même façon avec un spectre de la lampe polarisé. L'acquisition d'un spectre dure 10 ms, limité par la saturation de la caméra CCD, et chaque mesure est moyennée sur 100 acquisitions afin de diminuer le bruit.

L'orientation de l'échantillon est connue par rapport à la direction de croissance de l'échantillon. On peut la relier au réseau des billes grâce à la mesure AFM (2.7(b)), sur laquelle la direction horizontale correspond à la direction $U \to L \to K$ de la 1ZB. Nous plaçons l'échantillon de façon à ce que le plan d'incidence contienne cette direction, et donc les points Γ, X, U, L, K et L' (voir figure 2.7(c)).

La section de la 1ZB sondée est alors la coupe transverse représentée sur la figure 2.7(d), sur laquelle le vecteur $\overrightarrow{\Gamma L}$ est colinéaire à la direction verticale z. La face de la 1ZB de centre

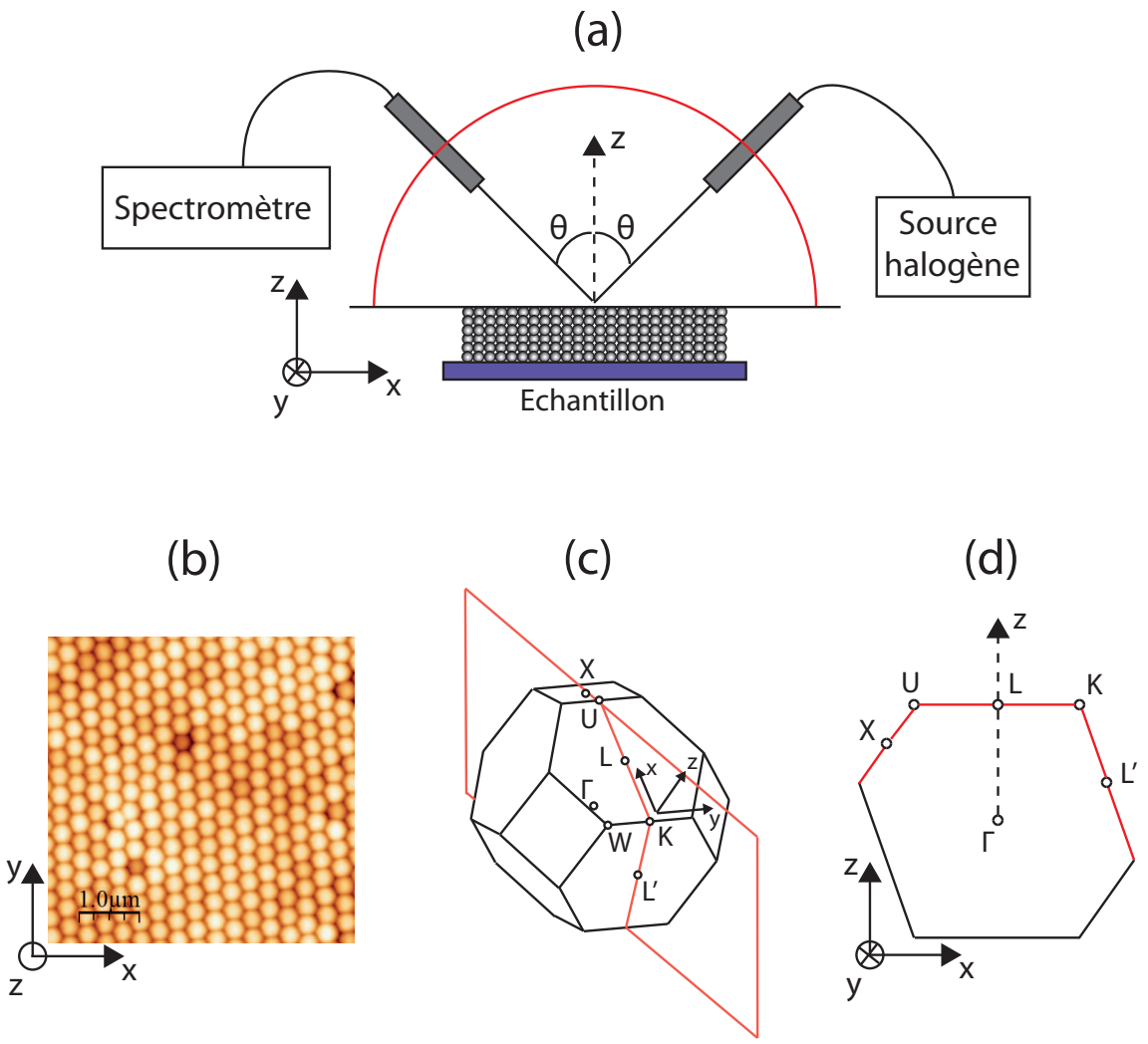

Figure 2.7 – Description du dispositif de goniométrie optique.(a) Schéma de la mesure de la réflexion spéculaire sur une opale. Les angles d'incidence θ sont tous inclus dans le plan d'incidence illustré par le demi cercle rouge. (b) Image AFM de l'opale, qui est placée avec cette orientation sur le plateau goniométrique. La ligne rouge correspond à la direction $U \rightarrow L \rightarrow K$ dans la zone de Brillouin. (c) Schéma de la zone de Brillouin et du plan d'incidence expérimental, qui coupe la zone de Brillouin suivant un plan passant par les points de haute symétrie Γ, X, U, L, K et L'. (d) Coupe de la zone de Brillouin obtenue par la section de la 1ZB avec le plan d'incidence expérimental.

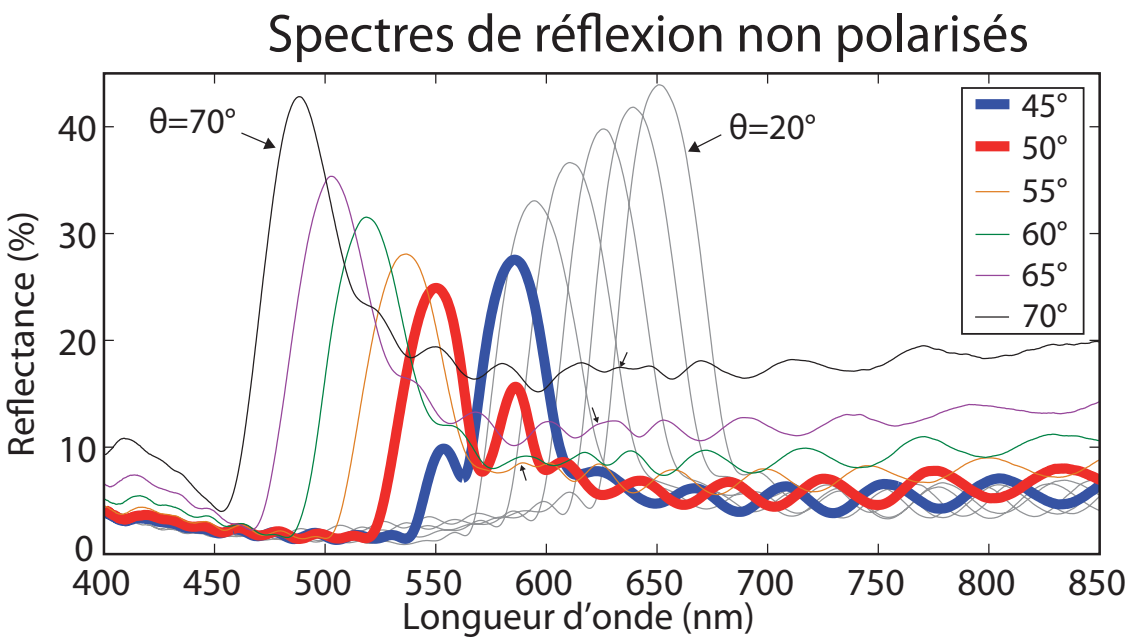

FIGURE 2.8 – Spectres de réflexion spéculaire sur une opale fabriquée par convection, mesurés pour des angles allant de $\theta = 20°$ à $\theta = 70°$ par pas de 5°. Les courbes bleue et rouge correspondent aux spectres mesurés à $\theta = 45°$ et $\theta = 50°$ respectivement, pour lesquels le pic de réflexion spéculaire se dédouble clairement.

le point de haute symétrie L est donc orthogonale à l'axe z.

2.4 Résultats expérimentaux

Nous présentons dans cette section les spectres de réflexion spéculaire non polarisés (figure 2.8) et de polarisation s et p (figures 2.10(a) et (b) respectivement). Nous commençons par commenter les spectres de réflexion spéculaire non polarisés.

2.4.1 Spectres de réflexion spéculaire non polarisés

La figure 2.8 représente les spectres obtenus en mesurant la réflexion spéculaire sur notre opale pour des angles θ pris de 20° à 70°, par pas de 5°. Cette série de mesures est réalisée sans polariseur. Ces spectres présentent les caractéristiques suivantes :

1. On observe un pic de réflexion principal, qui se déplace vers les basses longueurs d'onde à mesure que l'angle d'illumination θ augmente de 20 à 70°. Par exemple, les maxima des pics de réflexion à $\theta = 20°$ et 70° sont mesurés à 651 nm et 489 nm respectivement.
2. On observe l'apparition d'un second pic de réflexion pour des angles d'illumination situés autour de $\theta = 50°$. A $\theta = 45°$, ce second pic se situe à 550 nm et à $\theta = 50°$, il se situe à 586 nm. Ce second pic se décale donc vers les hautes longueurs d'onde avec l'angle

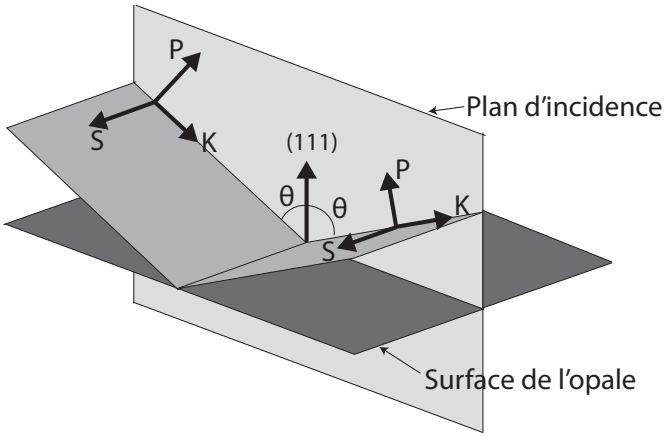

Figure 2.9 – Géométrie de l'expérience. La surface de l'opale est représentée en gris foncé, le plan de réflexion spéculaire en gris clair. Les polarisations s et p correspondent à une orientation du champ électrique orthogonale et incluse au plan de réflexion spéculaire, respectivement.

d'incidence, et pour les angles élevés constitue un léger épaulement indiqué par des flèches sur la figure 2.8.

3. L'intensité des pics de réflexion principaux diminue pour les angles d'illumination θ allant de 20° à 50°, puis augmente pour les angles allant de 50° à 70°.
4. Pour les longueurs d'onde supérieures aux pics de réflexion, le fond diminue pour les angles d'illumination θ allant de 20° à 50°, puis augmente pour les angles allant de 50° à 70°.
5. Les spectres présentent des oscillations importantes de part et d'autre des pics de réflexion principaux.

Les points (1), (2) et (3) correspondent à des effets de cristal photonique, et ce chapitre porte principalement sur l'étude de l'origine de ces pics de réflexion. Ces pics peuvent être interprétés comme des pics de résonance sur des plans de Bragg, et nous les caractériserons en détail par cette approche, ainsi que par l'étude des diagrammes de bandes de l'opale des sections 2.6 à 2.9.

Le point (4) (variation de l'intensité du fond aux longueurs d'onde élevées) trouve une explication dans l'étude des spectres de réflexion spéculaire résolus en polarisation. Les oscillations mentionnées dans le point (5) sont des oscillations de Fabry-Pérot dans la cavité formée entre les faces supérieure et inférieure de l'opale. Ces deux derniers points correspondent à des effets du matériau massif et nous les étudierons après avoir présenté les spectres de réflexion polarisés, dans la section 2.5.

2.4.2 Spectres de réflexion spéculaire polarisés

Les mesures résolues en polarisation sont réalisées en plaçant une feuille polarisante sur le diaphragme positionné en sortie de fibre. Le polariseur est orienté de façon à polariser la source suivant les polarisations s ou p, c'est-à-dire avec le champ électrique respectivement orthogonal

ou parallèle au plan d'incidence, comme illustré sur la figure 2.9. Les spectres de réflexion polarisés sont normalisés par le spectre polarisé de la lampe. Ces spectres de polarisation s et p sont représentés sur les figures 2.10(a) et (b) respectivement, l'angle d'incidence pris de $\theta = 20°$ à $\theta = 70°$, le pas de mesure étant de 5°.

Les spectres de réflexion spéculaire de polarisation s présentent des caractéristiques communes avec les spectres non polarisés de la figure 2.8. On observe un déplacement des pics de réflexion principaux vers les basses longueurs d'onde à mesure que θ augmente, et pour les angles d'incidence proches de $\theta = 50°$, on observe le dédoublement du pic (indiqué par des flèche pour les angles élevés). La seule différence notable concerne l'intensité des pics, quasiment constante pour $20° \leq \theta \leq 40°$ à environ 40 %. On note également que le fond aux longueurs d'onde élevées augmente régulièrement à mesure que l'angle d'indice augmente.

En revanche, les spectres de réflexion spéculaire de polarisation p diffèrent sensiblement des spectres non polarisés. On observe toujours un décalage des pics de réflexion principaux vers les basses longueur d'onde avec l'augmentation de l'angle d'incidence, mais le dédoublement du pic à $\theta = 50°$ et angles proches n'a pas lieu. On observe également une variation très importante de l'intensité des pics, qui diminue rapidement de 40 % à $\theta = 20°$ jusqu'à quasi extinction à $\theta = 55°$, puis augmente pour les angles d'incidence supérieurs. On note cependant que le fond aux longueurs d'onde élevées évolue de façon similaire au fond des spectres non polarisés, avec une diminution de son intensité de $\theta = 20°$ à $\theta = 55°$, puis une augmentation pour les angles supérieurs.

La quasi extinction du pic de polarisation p à $\theta = 55°$ est une question difficile à laquelle la communauté scientifique tente d'apporter une réponse depuis plusieurs années. Ce phénomène est souvent interprété comme un effet Brewster [63, 64], mais nous en donnerons une interprétation différente dans la section 2.10.

2.5 Effets décrits par un matériau homogène

Dans cette section, nous interprétons les phénomènes qui peuvent être décrits par une couche d'un matériau homogène dont on notera l'indice n_{eff} (ce point de vue était déjà celui de la caractérisation par ellipsométrie). Nous commençons par expliquer la variation du fond aux longueurs d'onde élevées en la comparant aux coefficients de réflexion de Fresnel, puis nous utilisons les oscillations de Fabry-Pérot pour déterminer l'épaisseur de l'opale.

2.5.1 Variation de la réflectivité aux longueurs d'onde élevées

Afin de nous affranchir des oscillations de Fabry-Pérot, les valeurs d'intensité du fond dont nous discutons ici sont déterminées en moyennant (pour un angle donné) l'intensité entre 700 nm et 800 nm, région hors résonance pour tous les angles d'incidence étudiés. La figure 2.11 représente l'évolution en fonction de l'angle d'incidence θ de l'intensité expérimentale du fond de polarisation s et p (points noirs et rouges respectivement). On mesure une intensité minimale à $\theta = 55°$. L'angle de Brewster θ_{BR} à l'interface entre deux milieux semi-infinis dont le premier

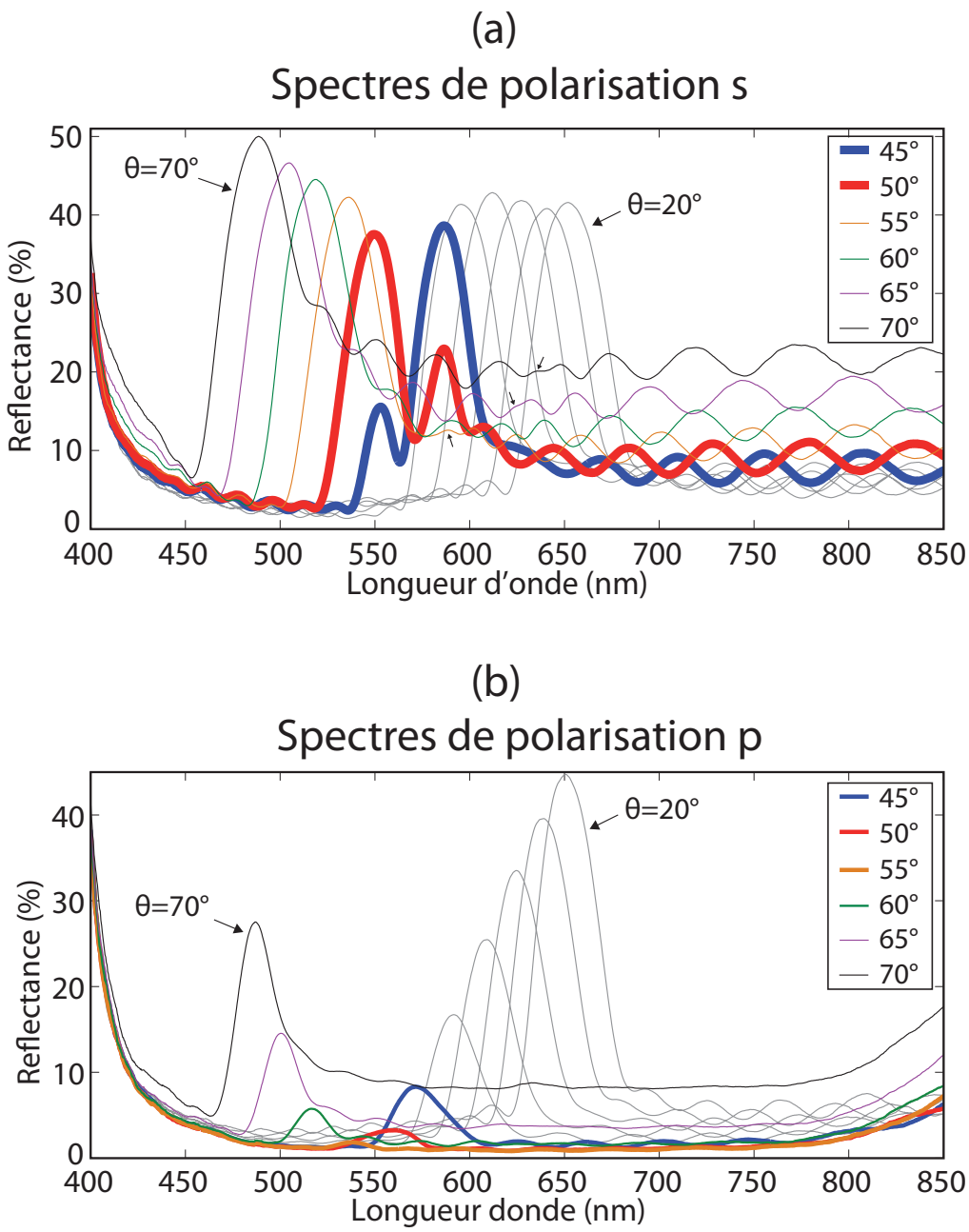

Figure 2.10 – (a) Spectres de réflexion spéculaires polarisés s sur l'opale d'étude, mesurés pour des angles pris de $\theta = 20°$ à $\theta = 70°$ par pas de 5°. L'intensité des pics varie peu, et on observe le dédoublement du pic de réflexion pour les angles proches de $\theta = 50°$. (b) Spectres de réflexion spéculaire polarisés p sur une opale fabriquée par convection, mesurés pour des angles pris de $\theta = 20°$ à $\theta = 70°$ par pas de 5°. La variation de l'intensité des pics est importante, avec une quasi-extinction à $\theta = 55°$. Le second pic de diffraction n'apparaît pas.

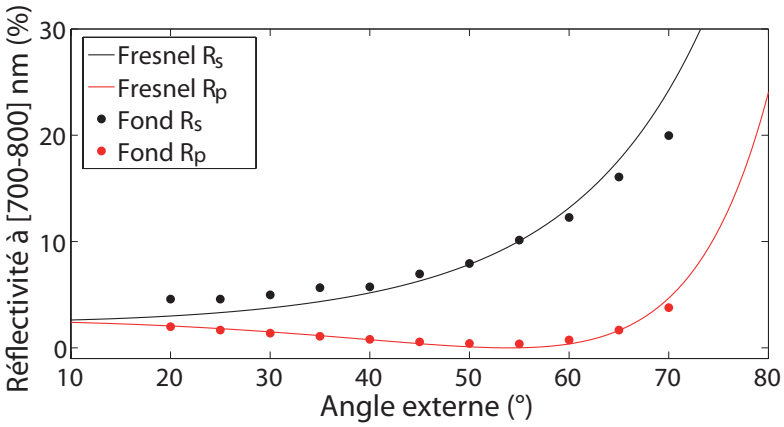

FIGURE 2.11 – Comparaison entre l'évolution avec l'angle d'incidence des coefficients de réflexion de Fresnel de polarisation s et p (courbes noire et rouge respectivement) et l'intensité du fond expérimental de polarisation s et p (points noirs et rouges respectivement) moyenné de 700 nm à 800 nm, région hors résonance pour tous les angles d'incidence étudiés. Les valeurs expérimentales ont été ajustées en les multipliant par un coefficient déterminé par la méthode des moindres carrés.

est l'air et le second un milieu d'indice n_{eff} est donné par la relation $\theta_{BR} = \arctan n_{eff}$. On en déduit un indice effectif de l'opale de $n_{eff} = 1,43$.

Nous comparons ces valeurs expérimentales à l'évolution des coefficients de réflexion de Fresnel de polarisation s et p (courbes noire et rouge respectivement) calculés pour un indice $n_{eff} = 1,43$ (avec $n_{eff} \sin\theta_{int} = \sin\theta$), et qui s'écrivent :

$$R_s(\theta) = \left[\frac{\cos\theta - n_{eff}\cos\theta_{int}}{\cos\theta + n_{eff}\cos\theta_{int}}\right]^2 \qquad R_p(\theta) = \left[\frac{n_{eff}\cos\theta - \cos\theta_{int}}{n_{eff}\cos\theta + n_{air}\cos\theta_{int}}\right]^2$$

La diffusion expérimentale est importante et nous avons ajusté les valeurs expérimentales en les multipliant par un coefficient déterminé par la méthode des moindres carrés. On constate que le fond expérimental suit l'évolution des coefficients de Fresnel de façon satisfaisante, malgré un écart aux petits et grands angles pour la polarisation s.

On remarque que la courbe du coefficient de réflexion de Fresnel de polarisation p est presque constante pour $50° \leq \theta \leq 58°$. Les valeurs du fond expérimental de polarisation p à $\theta = 50°$ et $55°$ sont très proches : on mesure une réflexion de 1% et 0,9% respectivement (avant d'effectuer l'ajustement). Compte tenu de l'erreur expérimentale, cet écart n'est pas significatif et la valeur de l'indice effectif $n_{eff} = 1,43$ que nous avons déduite de la mesure à $\theta = 55°$ est extrêmement approximative. Si l'on estime que $50° \leq \theta_{BR} \leq 55°$, alors l'indice effectif est compris dans un intervalle très large $1,19 \leq n_{eff} \leq 1,43$. Nous en concluons que la détermination d'un indice effectif de l'opale par identification de l'angle de Brewster n'est pas une méthode suffisamment précise. Cependant, la variation de l'intensité du fond expérimental de polarisation s et p suit bien l'évolution en fonction de l'angle d'incidence des coefficients de réflexion de Fresnel, et s'explique donc par une couche de matériau homogène.

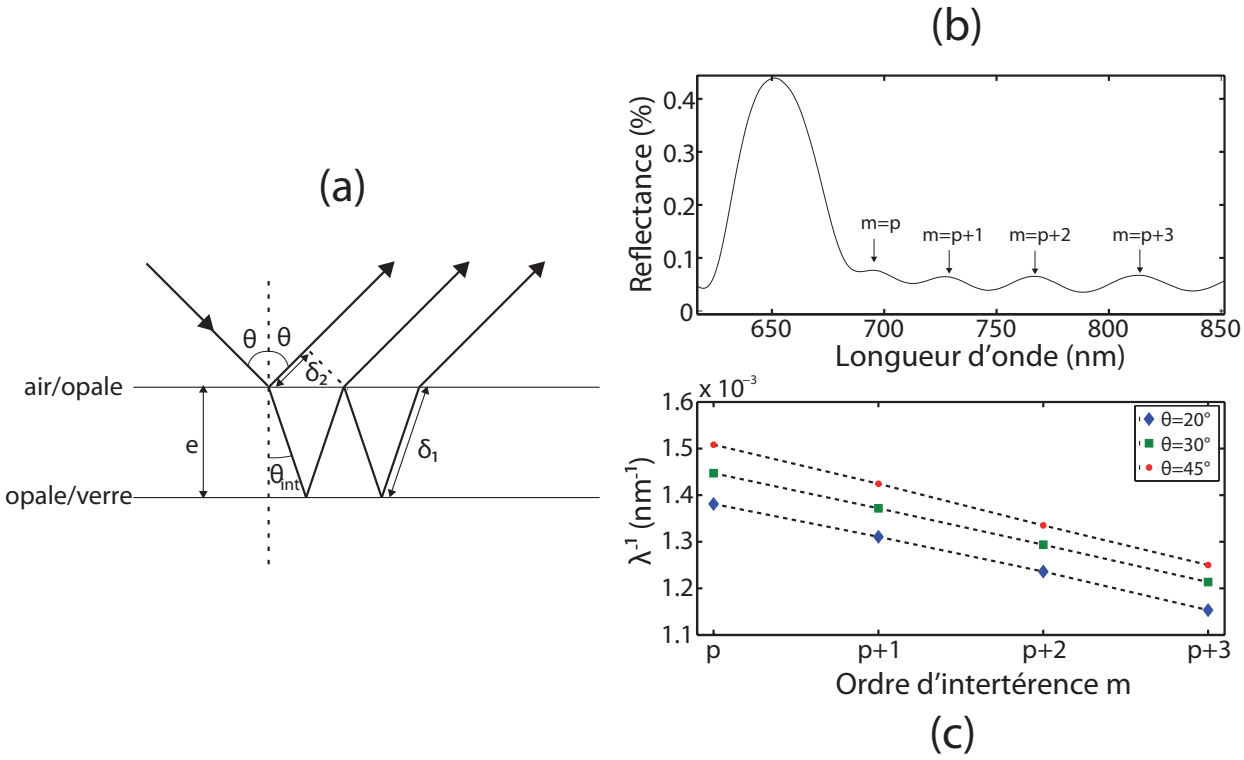

Figure 2.12 – (a) Schéma illustrant le mécanisme de formation des oscillations de Fabry-Pérot dans les spectres spéculaires mesurés sur l'opale A. Ces oscillations permettent de déterminer l'épaisseur e de l'opale. La différence de marche entre les premier et second rayon réfléchis s'écrit : $\delta = \delta_1 - \delta_2$. (b) Pic de réflexion mesuré à $\theta = 20°$. Les flèches indiquent la position des franges brillantes et leur associe un ordre d'interférence m. (c) Courbes représentant la position des franges brillantes en nombre d'onde en fonction de l'ordre d'interférence m, pour les angles $\theta = 20°$ (losanges), 30° (carrés) et 55° (disques). Le calcul de la pente de ces droites permet de déterminer l'épaisseur de l'opale.

2.5.2 Franges de Fabry-Pérot

Les oscillations que l'on observe de part et d'autre des pics de réflexion sont des franges de Fabry-Pérot et résultent des réflexions sur les deux interfaces de l'opale air/opale et opale/verre (en considérant l'opale comme un milieu homogène). La figure 2.12(a) illustre le mécanisme de formation des oscillations. L'observation de ces oscillations atteste de la faible épaisseur de l'opale [65].

Les franges de Fabry-Pérot nous permettent de déterminer l'épaisseur de l'opale. La figure 2.12(a) représente l'opale modélisée par une lame d'épaisseur e et d'indice effectif n_{eff} sur laquelle est dirigé un faisceau formant un angle θ avec la normale au plan de la lame. On a alors :

$$\delta_1 = 2\,\frac{e\,n_{eff}}{\cos(\theta_{int})}$$
$$\delta_2 = 2\,e\;n_{eff}\tan(\theta_{int})\;\sin(\theta_{int})$$

$$\text{soit pour les franges brillantes :}\delta = \delta_1 - \delta_2 \tag{2.1}$$
$$= m\lambda_m \tag{2.2}$$
$$= 2\,e\,n_{eff}\,\cos(\theta_{int}) \tag{2.3}$$

où m est l'ordre d'interférence (voir figure 2.12(b) [2]) et θ_{int} l'angle du faisceau réfracté. On a donc $\lambda^{-1} \propto m$ et la courbe de λ^{-1} en fonction de m est une droite, ce qui confirme le fait que les franges observées sont des franges de Fabry-Pérot. Le calcul du coefficient directeur de cette droite permet de déterminer l'épaisseur de l'opale. Par exemple, la figure 2.12(c) représente les valeurs de λ^{-1} en fonction de m pour les angles $\theta = 20°$ (losanges), $\theta = 30°$ (carrés) et $\theta = 55°$ (disques). Le calcul du coefficient directeur a des droites passant par ces points permet de déduire avec la relation $e = (2\,a\,n_{eff}\,\cos\theta_{int})^{-1}$ les valeurs de l'épaisseur de l'opale.

L'épaisseur de l'opale calculée pour chaque angle expérimental, et en prenant $n_{eff} = 1,31$ ou 1,28 les valeurs déterminées par ajustements de Maxwell-Garnett et Cauchy respectivement (voir table 2.1), est $e = 5,3 \pm 0,1\,\mu$m ou 5,5 $\pm 0,1\mu$m, respectivement. Le fait que l'on trouve la même épaisseur pour chaque angle θ confirme l'effet de Fabry-Pérot. On rappelle que les deux profondeurs mesurées par profilométrie dans la zone centrale de l'opale sont de 5,2 μm et 5,5 μm. Ainsi, l'étude des franges de Fabry-Pérot nous permet de faire le lien entre les mesures d'ellipsométrie et de profilométrie, et confirme que l'indice effectif de l'opale est proche des valeurs déterminées par ellipsométrie.

2.6 Lien théorique entre diagramme de bandes et lois de Bragg

L'expérience de goniométrie décrite dans la section 2.4 nous a permis de mettre en évidence un effet de réflexion particulier de la lumière sur l'opale : la présence de pics de réflexion dépendant de l'angle d'incidence θ. Il existe deux approches permettant d'interpréter ce déplacement :

- La première s'appuie sur un modèle diffractif à une dimension. Le modèle utilisé est celui des plans réfléchissants et infiniment fins régulièrement espacés dans un milieu homogène d'indice n_{eff}, et la loi permettant de décrire l'évolution de la longueur d'onde des pics de réflexion en fonction de l'angle d'incidence est la loi de Bragg adaptée à différentes familles de plans suivant le pic de réflexion considéré (longueur d'onde croissante ou décroissante avec l'angle d'incidence). Nous rappelons la condition d'interférences constructives introduite dans le premier chapitre, qui pour une famille de plans $(hk\ell)$ quelconque s'écrit :

$$\lambda_{hk\ell} = 2\,n_{eff}\,d_{hk\ell}\,\cos\theta_{hkl,int} \tag{2.4}$$

  où $d_{hk\ell}$ est la distance entre les plans $(hk\ell)$, $\theta_{hkl,int}$ l'angle de réfraction sur ces plans, et n_{eff} l'indice du milieu entre les plans. Cet indice pourra être relié à l'indice des billes

2. Nous attribuons à la première frange à droite du pic de réflexion l'ordre d'interférence $m = p$ où p est un entier.

de silice par la relation (dont la validité pour l'opale a été discutée notemment dans la référence [66]) :

$$n_{eff}^2 = n_{SiO_2}^2 f + n_h^2(1-f) \tag{2.5}$$

où n_{SiO_2} est l'indice des billes de silice, n_h l'indice du milieu hôte (ici $n_h = n_{air} = 1$) et f le facteur de remplissage qui pour une structure cfc compacte vaut $f = 0,74$. Les spectres de réflexion spéculaire (semblables à celui présenté sur la figure 2.8) donnant les valeurs de θ et $\lambda_{hk\ell}$, cette dernière équation est la relation généralement utilisée dans la littérature [38, 61, 62] pour déterminer l'indice effectif et le diamètre des billes (relié à la distance entre les plans) d'une opale.

- La seconde approche consiste à interpréter les pics de réflexion comme des ondes dont la fréquence, située à l'intérieur d'une bande interdite, ne peuvent se propager dans le cristal et sont donc réfléchies. Dans une opale, les bandes interdites sont incomplètes, c'est-à-dire que suivant les différentes directions du cristal considérées, elles ne sont pas suffisamment larges pour se recouvrir et former une bande interdite omnidirectionnelle. L'évolution de la longueur d'onde des pics de réflexion en fonction de l'angle d'incidence est alors décrite par celle des bandes interdites en fonction de l'orientation des vecteurs d'onde pointant sur la surface de la zone de Brillouin (voir section 1.5.2). Cette approche repose sur le calcul des diagrammes de bandes pour les vecteurs $\boldsymbol{k}$ contenus dans le plan d'incidence expérimental.

Ces deux approches sont complémentaires. Dans cette section, nous examinons d'un point de vue théorique le lien entre ces deux modèles.

2.6.1 Diagrammes de bandes : directions $L \to U \to X$ et $L \to U \to K$

Nous traçons sur les figures 2.13(a) et (b) en fonction de l'angle d'incidence externe les diagrammes de bandes de l'opale suivant les directions $L \to U \to X$ et $L \to K \to L'$ respectivement de la zone de Brillouin. Nous suivons donc l'évolution des bandes (en noir) en fonction d'un vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ dont l'extrémité suit le chemin bleu sur le schéma de la tranche de la 1ZB en encart de chaque figure. Rappelons que le vecteur $\overrightarrow{\Gamma L}$ est colinéaire à l'axe z. Ces diagrammes se divisent en deux parties, une pour chaque face de la 1ZB explorée, la limite entre chaque partie étant représentée par une droite verticale grise.

Ainsi pour les deux diagrammes, la première partie à gauche correspond à la face contenant le point L et la partie à droite correspond à une face inclinée. Les numéros désignent un groupe de bandes par ordre croissant d'énergie, et la face de la zone de Brillouin considérée (numéro « prime »pour les faces inclinées). Les bandes interdites sont colorées en rouge. L'indice de la silice utilisé pour le calcul de ces diagrammes est $n_{SiO_2} = 1,4$, déduit de la relation (2.5) et de notre indice effectif de référence $n_{eff} = 1,31$ déterminé par ellipsométrie dans la section 2.2.3. Enfin, l'angle formé entre le vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ et le vecteur $\overrightarrow{\Gamma L}$ correspondant à l'angle de réfraction interne θ_{int} (voir encart de la figure 2.13(a)), l'angle d'incidence externe θ en abscisse est déterminé en fonction de θ_{int} par la loi de Snell-Descartes : $\sin\theta = n_{eff}\sin\theta_{int}$. Les points

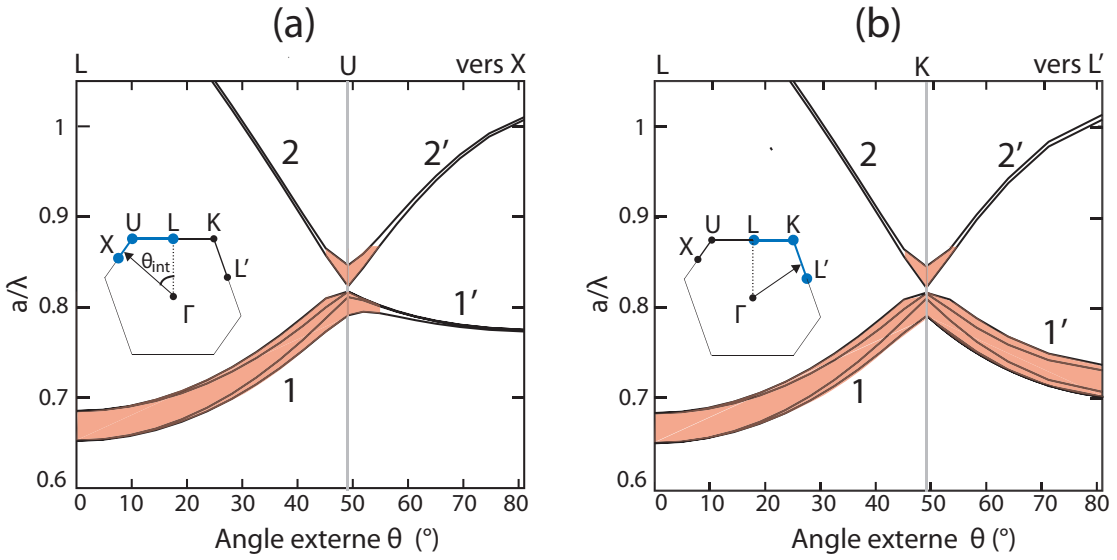

FIGURE 2.13 – Diagrammes de bandes suivant les directions (a)$L \to U \to X$ et (b)$L \to K \to L'$ de la zone de Brillouin. Le chemin suivi par l'extrémité du vecteur $\boldsymbol{k}$ est représenté en bleu sur le schéma de la tranche de la 1ZB en encart de chaque figure. Les numéros désignent un groupe de bandes, et les bandes interdites formées par ces groupes de bandes sont colorées en rouge. L'indice des billes de silice utilisé pour le calcul de ces diagrammes est $n_{SiO_2} = 1,4$.

X et L' sont situés à des angles internes élevés et ne sont pas accessibles par notre dispositif, d'où la représentation tronquée des diagrammes de bandes.

Nous commençons par commenter les bandes 1 et 2. Nous considérons donc les vecteurs $\boldsymbol{k}$ dont l'extrémité pointe sur la face de la 1ZB de forme hexagonale orthogonale à l'axe z (voir figure 2.7(c)), le chemin suivi partant de L jusqu'à U sur le diagramme 2.13(a), et de L jusqu'à K sur le diagramme 2.13(b). On remarque que dans les directions $L \to U$ et $L \to K$, symétriques par rapport au point L, les bandes 1 et 2 sont identiques. Les bandes 2 forment une bande interdite aux points U et K, qui devient très étroite dès que l'on s'éloigne de $\theta \approx 50°$. Par contre pour $\theta = 0$ (incidence normale), une bande interdite centrée à $a/\lambda \approx 0,67$ et relativement large ($\Delta\omega \approx 0,4$ en unités de a/λ, soit une trentaine de nanomètres en prenant $D = 338\,\text{nm}$ la valeur déterminée par mesure AFM) se forme entre les bandes 1. A mesure que le vecteur $\boldsymbol{k}$ se rapproche du point U (ou K), c'est-à-dire que l'angle d'incidence se rapproche de $\theta \approx 50°$, cette bande interdite *se déplace vers les hautes énergies*.

Pour $\theta \geq 50°$, l'extrémité du vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ longe une face inclinée de la 1ZB. Sur le diagramme 2.13(a), la face explorée est celle de forme carrée et de centre le point de haute symétrie X (voir figure 2.7(c)). L'énergie des bandes 1' et 2' respectivement diminue et augmente avec l'angle d'incidence, et les bandes interdites formées au point U se referment dès que l'on s'en éloigne.

Sur le diagramme 2.13(b), la face explorée est celle de forme hexagonale et de centre le point de haute symétrie L'. Cette face est identique à la face de centre L, et les bandes 1' et 2' évoluent de façon symétrique aux bandes 1 et 2, la différence apparente étant due à notre choix

de tracer l'énergie des bandes en fonction de l'angle d'incidence externe [3]. Ainsi, l'énergie des bandes 1' et 2' respectivement diminue et augmente avec l'angle d'incidence, la bande interdite formée au point K par les bandes 2' se referme et celle formée par les bandes 1' *se déplace vers les basses énergies* à mesure que l'angle d'incidence externe θ augmente.

2.6.2 Loi de Bragg : pics de réflexion principaux aux petits angles

Nous cherchons à présent à expliquer l'évolution des bandes interdites de l'opale par une approche diffractive sur des familles de plans parallèles. Pour cela, nous comparons sur les figures 2.14(a) et (b) les bandes interdites formées dans les directions $L \to U \to X$ et $L \to K \to L'$ respectivement du diagramme de bandes de l'opale (ces diagrammes sont identiques à ceux présentés précédemment sur les figures 2.13(a) et (b)), avec différentes lois de Bragg adaptées à des familles de plans particulières de l'opale.

La courbe rouge présente sur les deux diagrammes correspond aux longueurs d'onde diffractées en fonction de l'angle d'incidence calculées avec la relation (2.4) adaptée aux plans horizontaux (111). Cette relation se réécrit simplement en remplaçant dans la relation (2.4) le terme $d_{hk\ell}$ par $d_{111} = \sqrt{2/3}D$ avec D le diamètre des billes, soit :

$$\lambda_{111} = 2\sqrt{2/3}n_{eff}\, D\, \cos\theta_{int} = 2\sqrt{2/3}D\sqrt{n_{eff}^2 - \sin^2\theta} \tag{2.6}$$

Cette loi est celle utilisée dans la littérature [61, 62] pour décrire l'évolution des pics de réflexion principaux sur une opale (pics dont la longueur d'onde diminue avec l'angle d'incidence). Les longueurs d'onde obtenues sont converties en fréquences normalisées a/λ sur les diagrammes de bandes, en prenant $a = \sqrt{2}D$ la maille du réseau triangulaire. Il est intéressant de remarquer qu'ainsi, le terme D dans la relation (2.6) se simplifie, illustrant la propriété d'invariance d'échelle propre aux cristaux photoniques.

Les longueurs d'onde calculées suivent l'évolution de la bande interdite formée par les bandes 1, avec un léger décalage vers les basses énergies par rapport au centre de la bande interdite. Cependant, la correspondance entre les deux approches (diffraction de Bragg sur les plans (111) et bande interdite formée par les bandes 1) est satisfaisante et nous permet d'affirmer que si les longueurs d'onde des pics de réflexion spéculaire jusqu'aux angles d'incidence $\theta \approx 50°$ sont correctement décrites par la relation (2.6), alors les pics de réflexion sont la manifestation de la bande interdite formée pour les vecteurs d'onde dont l'extrémité pointe sur la face de la 1ZB de centre L et orthogonale à la direction z. Ces deux points de vue décrivent le même phénomène : le plan ULK est le plan bissecteur du vecteur $\boldsymbol{G}$ orthogonal aux plans (111), et le vecteur $\boldsymbol{k}$ satisfait aux conditions de Laue sur cette famille de plans.

3. Les bandes sont parfaitement symétriques si on trace leur énergie en fonction de l'angle interne θ_{int}, voir figure 1.13(c)

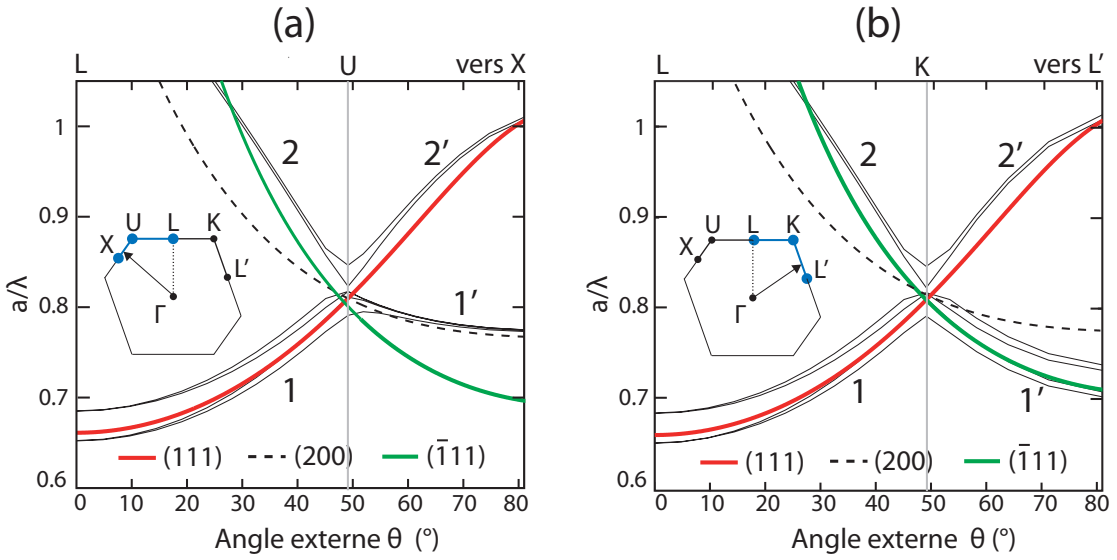

FIGURE 2.14 – Diagrammes de bandes suivant les directions (a)$L \to U \to X$ et (b)$L \to K \to L'$ de la zone de Brillouin. Le chemin suivi par l'extrémité du vecteur $\boldsymbol{k}$ est représenté en bleu sur le schéma de la tranche de la 1ZB en encart de chaque figure. Les numéros désignent un groupe de bandes. Sur chacun des deux diagrammes, les courbes rouge, verte et pointillés correspondent aux longueurs d'onde théoriques diffractées respectivement par les plans (111), ($\bar{1}$11) et (200) de l'opale, et calculées avec lois de Bragg adaptées à ces plans. L'indice des billes de silice utilisé pour le calcul de ces diagrammes est $n_{SiO_2} = 1,4$ et l'indice effectif utilisé dans les lois de Bragg est $n_{eff} = 1,31$.

2.6.3 Lois de Bragg : pics de réflexion secondaires

Dans la zone de Brillouin, les vecteurs $\overrightarrow{\Gamma X}$ et $\overrightarrow{\Gamma L'}$ forment avec le vecteur $\overrightarrow{\Gamma L}$ un angle $\theta_X = 54,7°$ et $\theta_{L'} = 70,5°$ respectivement, et sont les vecteurs normaux aux plans (200) et ($\bar{1}$11). Les plans (200) sont séparés entre eux par une distance $d_{200} = a/2 = (\sqrt{2}/2)D$ et les plans ($\bar{1}$11) par une distance $d_{\bar{1}11} = d_{111} = \sqrt{2/3}D$ (voir figure 2.15(a) et (b)). Si l'on considère une onde incidente sur les plans horizontaux (111) de l'opale avec une angle θ, réfractée dans l'opale d'indice effectif n_{eff} avec un angle $\theta_{int} = \arcsin(\sin\theta/n_{eff})$ et incidente avec un angle $\theta_{hk\ell} = \alpha_{hk\ell} - \theta_{int}$ sur une famille de plans $(hk\ell)$ séparés d'une distance $d_{hk\ell}$ et formant un angle $\alpha_{hk\ell}$ avec la direction horizontale (voir figure 2.15(c)), la condition de diffraction constructive sur ces plans se réécrit à partir de la relation (2.4) :

$$\lambda_{hk\ell} = 2d_{hk\ell}\, n_{eff} \sqrt{1 - \sin^2(\alpha_{hk\ell} - \arcsin(\sin\theta/n_{eff}))} \tag{2.7}$$

où $d_{hk\ell} = d_{200}$ et $\alpha_{hk\ell} = \alpha_{200}$ ou $d_{hk\ell} = d_{\bar{1}11}$ et $\alpha_{hk\ell} = \alpha_{\bar{1}11}$ selon que la famille de plans considérée soit la famille de plans (200) ou ($\bar{1}$11). Les longueurs d'onde correspondant à la diffraction sur ces plans sont représentées sur les diagrammes 2.14(a) et (b) par les courbes en pointillés pour les plans (200) et vertes pour les plans ($\bar{1}$11). L'évolution des longueurs d'onde diffractées par les plans (200) suit correctement celle des bandes 1' dans la direction $U \to X$ (diagramme 2.14(a)), tandis que celle des longueurs d'onde diffractées par les plans ($\bar{1}$11) suit

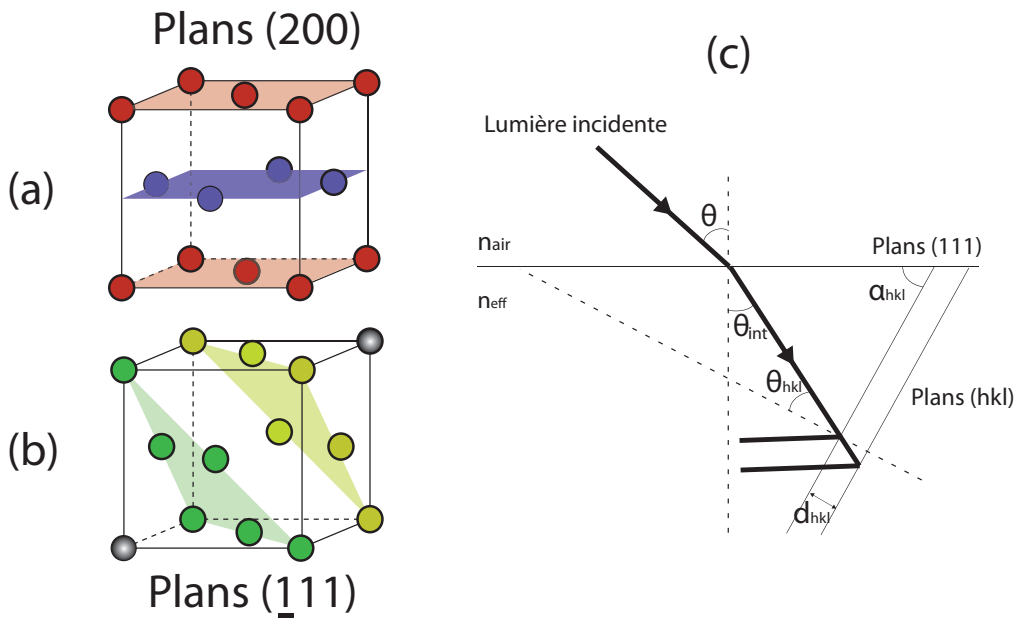

Figure 2.15 – (a) Plans (200) d'une structure cfc. (b) Plans ($\bar{1}11$) d'une la structure cfc. (c) Schéma illustrant les angles d'intérêt dans le mécanisme de diffraction par une famille de plans ($hk\ell$ inclinés d'un angle $\alpha_{hk\ell}$ par rapport à la normale aux plans (111).

de façon satisfaisante l'évolution de la bande interdite formée par les bandes 1' dans la direction $K \to L'$ (diagramme 2.14(b)).

Il n'est cependant pas possible d'associer directement, comme dans la section précédente, les pics de réflexion secondaires aux lois de Bragg adaptées aux plans (200) ou ($\bar{1}11$). La raison en est fondamentale : le phénomène décrit par ces lois, à savoir l'évolution en fonction de l'angle d'incidence de la longueur d'onde de l'onde *réfléchie de façon spéculaire sur des plans inclinés*, ne correspond pas à la géométrie de notre expérience. En effet expérimentalement, ces seconds pics sont mesurés à des angles spéculaires par rapport à l'angle d'incidence sur les plans (111), et le schéma 2.15(c) montre clairement qu'il est impossible pour une onde diffractée par une famille de plans inclinés d'être mesurée aux angles de détection spéculaires (l'onde ne peut d'ailleurs pas être dirigée vers l'interface opale/air).

Dans la littérature, ce second pic est généralement attribué à de la diffraction sur les plans ($\bar{1}11$) de l'opale [39,63,64,67–70]. La raison en est que la loi de Bragg adaptée aux plans ($\bar{1}11$) décrit relativement bien l'évolution de la longueur d'onde de ces pics avec l'angle d'incidence. Cette loi de Bragg est préférée à celle adaptée aux plans (200) notamment parce que la bande interdite formée dans la direction $U \to X$ est moins robuste que celle formée dans la direction $K \to L'$ (voir diagrammes 2.13(a) et (b)). On trouve cependant quelques références publiées au début des années 2000 attribuant ce second pic à de la diffraction sur les plans (200) de l'opale [61,62].

A notre connaissance, la question du mécanisme expliquant l'observation de ce second pic aux angles spéculaires n'a jamais été résolue, ni même abordée, excepté dans la référence [71] où les auteurs proposent l'intervention d'une troisième famille de plans. Les hypothèses et

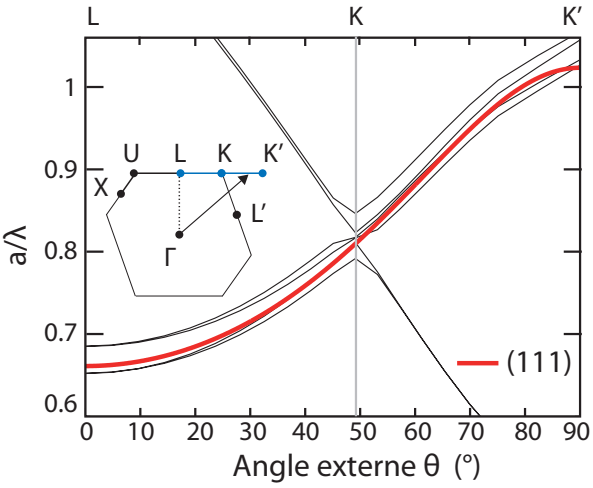

FIGURE 2.16 – Diagramme de bandes suivant la direction $L \to K \to K'$, avec $\overrightarrow{LK}=\overrightarrow{LK'}$ et donc K' situé en dehors de la zone de Brillouin. La courbe rouge correspond aux longueurs d'onde diffractées par les plans (111) d'une structure cfc compacte. L'indice des billes de silice utilisé pour le calcul du diagramme est $n_{SiO_2} = 1,4$ et l'indice effectif utilisé dans la loi de Bragg est $n_{eff} = 1,31$. L'encart représente une tranche de la zone de Brillouin suivant le plan contenant les points Γ, U, L et K, et le chemin suivi par l'extrémité du vecteur $\boldsymbol{k}$ est coloré en bleu.

conclusions développées dans cet article nous semblent erronées, pour des raisons que nous évoquerons plus tard. Cependant, l'idée est intéressante et je m'en inspire dans cette thèse pour répondre en grande partie à cette question, dans la section 2.9.

2.6.4 Loi de Bragg : pics de réflexion principaux aux grands angles

Les longueurs d'onde calculées par les lois de Bragg adaptées aux plans (200) et ($\bar{1}11$) (courbes pointillés et vertes) ne suivent pas l'évolution des bandes 2 sur les diagrammes 2.14(a) et (b). Ces bandes sont calculées dans la direction $L \to U$ et $L \to K$ respectivement, c'est-à-dire pour des vecteurs $\boldsymbol{k}$ dont l'extrémité longe la face hexagonale de centre L de la 1ZB. Or nous avons montré dans la section 2.6.2 que de tels vecteurs d'onde étaient diffractés par les plans (111) de l'opale (courbes rouges pour $\theta < 50°$ sur les diagrammes 2.14(a) et (b)). La mauvaise correspondance entre les lois de Bragg adaptées aux plans (200) et ($\bar{1}11$) et les bandes 2 est donc due au fait que les vecteurs $\boldsymbol{k}$ considérés pointent sur la mauvaise face de la 1ZB. Autrement dit, nous ne considérons pas des vecteurs d'onde satisfaisant aux conditions de Laue pour ces plans. On explique de la même façon l'écart entre les longueurs d'onde calculées par la loi de Bragg adaptée aux plans (111) (courbe rouge) et les bandes 2'.

Nous traçons sur la figure 2.16 le diagramme de bandes de l'opale suivant le chemin $L \to K \to K'$ avec K' situé en dehors de la zone Brillouin (voir schéma de la tranche de la 1ZB en encart), c'est-à-dire que nous considérons des vecteurs d'onde $\boldsymbol{k}$ dont l'extrémité pointe *sur le prolongement du segment* $[LK]$, et donc de la face de la 1ZB de centre L. La courbe rouge correspond aux longueurs d'onde calculées avec la loi de Bragg adaptée aux plans (111). La

correspondance est alors satisfaisante pour tous les angles θ. *Nous avons comparé les bandes interdites formées dans une structure cfc compacte dans des directions particulières de la 1ZB, à des lois de Bragg adaptées à des plans particuliers propres à la structure cfc. Nous avons montré que la correspondance entre ces deux approches était satisfaisante. Dans la section suivante, je me sers de l'approche à une dimension (lois de Bragg) pour caractériser notre opale d'étude.*

2.7 Caractérisation de l'opale avec les lois de Bragg

Cette section est consacrée à la détermination des paramètres D et n_{eff} de l'opale à l'aide des lois de Bragg déduites du modèle des plans réfléchissants dans la section précédente. Cette approche à une dimension donne une bonne description de la position spectrale du maximum des pics de réflexion en fonction de l'angle d'incidence. Les pics de réflexion mesurés sur l'opale se répartissent en deux catégories :

- les pics de réflexion principaux se déplaçant vers les basses longueurs d'onde à mesure que l'angle d'incidence augmente,
- les pics de rélexion secondaires apparaissant pour les angles d'incidence proches de $\theta = 50°$ et se déplaçant vers les hautes longueurs d'onde à mesure que l'angle d'incidence augmente.

Comme nous l'avons expliqué dans la section précédente, les pics de réflexion principaux correspondent aux longueurs d'onde diffractées par les plans (111) de l'opale, et doivent suivre la loi de Bragg de la relation (2.6). L'attribution des pics de réflexion secondaires à un phénomène de diffraction sur une famille de plans particulière de l'opale est moins directe. Rappelons que dans la section précédente, nous avons déterminé des lois de Bragg adaptées aux plans inclinés (200) et ($\bar{1}11$), et dont l'évolution suit correctement celle des bandes interdites formées par l'opale pour des angles d'incidence $\theta > 50°$. Nous avons également conclu que ces lois décrivent une géométrie qui n'est pas celle de notre expérience puisqu'elles impliquent que les ondes diffractées par ces plans inclinés ne peuvent être détectées aux angles de réflexion spéculaires (voir schéma 2.15(c)). Dans cette section, nous suivons la démarche généralement adoptée par la communauté scientifique sur cette question, en négligeant la prise en compte d'un mécanisme permettant d'expliquer l'observation de ces pics de réflexion aux angles spéculaires. Cela nous permettra également de souligner les limites du modèle des plans réfléchissants pour la caractérisation d'une opale.

2.7.1 Ajustement de la longueur d'onde des pics de réflexion spéculaire

La figure 2.17(a) représente un ajustement de la longueur d'onde des pics de réflexion spéculaire de la figure 2.8 par la loi de Bragg adaptée aux plans (111) de la relation (2.6) [61,62]. L'ajustement est réalisé par la méthode des moindres carrés qui minimise la quantité $\sum(\lambda_{111} - \lambda_{exp})^2$, et permet de déterminer l'indice effectif $n_{eff} = 1,37 \pm 0,02$ de l'opale et le diamètre des billes $D = 301 \pm 5\,\text{nm}$ (et donc une distance entre les plans (111) $d_{111} = \sqrt{2/3}\,D = 246 \pm 4\,\text{nm}$).

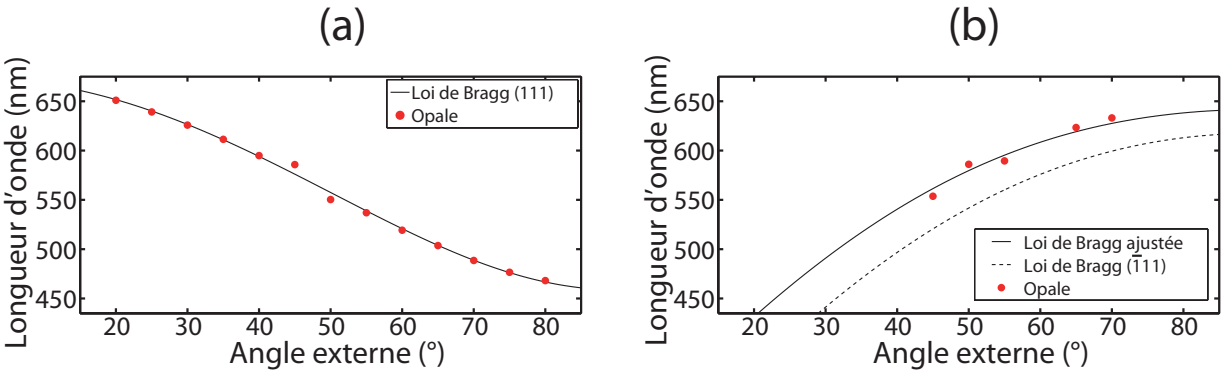

FIGURE 2.17 – (a) Ajustement par une loi de Bragg sur les plans (111) réalisé sur les positions en longueur d'onde des pics principaux de diffraction. Les paramètres de l'ajustement sont $n_{eff} = 1,37 \pm 0,02$ et $D = 301 \pm 5\,\text{nm}$. (b) Ajustement par une loi de Bragg sur les plans ($\bar{1}$11) réalisé sur les positions en longueur d'onde des pics apparaissant autour de $\theta = 50°$ et se décalant vers les hautes longueurs d'onde avec l'angle d'incidence. Les paramètres de l'ajustement sont $n_{eff} = 1,37$ et $D = 301\,\text{nm}$. La valeur ajustée est $\alpha_{\bar{1}11} = 65°$. La courbe en pointillé représente la loi de Bragg pour les paramètres $n_{eff} = 1,37$, $D = 301\,\text{nm}$ et $\alpha_{\bar{1}11} = 70,5°$, l'angle théorique entre les plans ($\bar{1}$11) et (111) de la structure cfc.

Les erreurs sont calculées au premier ordre de dérivation en prenant en compte l'incertitude sur la mesure de l'angle et le pointé des maxima.

On constate l'excellence de l'accord entre les points expérimentaux (points rouges) et l'ajustement, excepté pour les points à $\theta = 45°$ et $50°$. Pourtant, on constate que :

- les valeurs déterminées sont très éloignées des valeurs mesurées par ellipsométrie et AFM ($n_{eff} = 1,31$ et $D = 340\,\text{nm}$),
- la valeur de l'indice effectif $n_{eff} = 1,37$ donne avec la relation (2.5) un indice des billes de silice de $n_{SiO_2} = 1,48$, ce qui est très élevé, surtout si l'on considère que la silice est poreuse [72]

Si les pics de réflexion secondaires résultent d'un processus diffractif faisant intervenir les plans (200) ou ($\bar{1}$11), l'évolution de leur longueur d'onde avec l'angle d'incidence externe doit être décrite par la relation (2.7). On rappelle $\alpha_{200} = 54,7°$ et $\alpha_{\bar{1}11} = 35,3°$ l'inclinaison théorique par rapport à la direction verticale des plans (200) et ($\bar{1}$11) respectivement, et avec la valeur du diamètre des billes $D = 301\,\text{nm}$ déterminée précédemment, on a $d_{200} = (\sqrt{2}/2)D = 213\,\text{nm}$ et $d_{\bar{1}11} = (\sqrt{2/3})D = 246\,\text{nm}$, la distance interréticulaire de ces familles de plans.

Nous commençons par effectuer un ajustement par la méthode des moindres carrés sur les deux variables $d_{hk\ell}$ et $\alpha_{hk\ell}$ de la relation (2.7), en fixant la valeur de l'indice effectif à $n_{eff} = 1,37$ déterminée précédemment. On obtient $d_{hk\ell} = 254 \pm 5\,\text{nm}$ et $\alpha = 68 \pm 0,1°$, angle proche de la valeur théorique $\alpha_{\bar{1}11} = 70,5°$. Il semble donc raisonnable d'attribuer la diffraction de ces seconds pics aux plans ($\bar{1}$11) [39, 63, 64, 67–70], l'angle $\alpha_{200} = 54,7°$ des plans (200) avec les plans (111) étant trop éloigné de la valeur ajustée.

En revanche, l'ajustement donne $d_{hk\ell} = d_{\bar{1}11} = 254 \pm 5\,\text{nm}$, soit 3% de plus que la valeur

déterminée avec le premier ajustement (on rappelle que normalement $d_{\bar{1}11} = d_{111}$). Avec la relation $d_{\bar{1}11} = \sqrt{2/3}D$, on trouve un diamètre des billes $D = 311 \pm 7\,\text{nm}$. La valeur ajustée de D sur les plans $(\bar{1}11)$ est donc supérieure de 10 nm à celle ajustée sur les plans (111) (mais reste toujours très éloignée de la valeur AFM), soit un écart d'environ 3%. Ce problème a déjà été évoqué dans la littérature : Khunsin *et al.* [39] caractérisent une distance $d_{\bar{1}11}$ plus grande de 4%, et justifient cet écart par une élongation de la maille du réseau de l'opale lors du procédé de fabrication par convection. Cependant, excepté d'autres références [67,71] où les auteurs trouvent des angles $\alpha_{\bar{1}11}$ plus bas (valeurs déterminées par un ajustement avec une loi de Bragg) que l'angle théorique $\alpha_{\bar{1}11} = 70,52°$ et donc des distances $d_{\bar{1}11}$ plus étendues, nous n'avons pas trouvé de preuves formelles dans la littérature (images SEM par exemple) que la structure de l'opale puisse se dilater.

Avec les valeurs que nous venons de déterminer, il nous faut choisir entre : une distance $d_{\bar{1}11}$ plus grande expliquée par l'élongation de l'opale, mais des billes petites qui ne seraient plus en contact ; ou une distance $d_{\bar{1}11}$ plus grande expliquée par des billes de diamètre plus élevé pour les plans $(\bar{1}11)$, ce qui n'a pas de sens puisque les billes utilisées sont les mêmes pour tous les plans (avec certes une dispersion du diamètre de 3%, mais cette dispersion est la même quel que soit le plan considéré). Aucune de ces propositions ne nous semble recevable.

Nous effectuons à présent un ajustement sur la seule variable $\alpha_{hk\ell}$, en considérant que toutes les billes formant la structure cfc sont de taille identique, soit en fixant $d_{\bar{1}11} = 246\,\text{nm}$ (valeur calculée pour $D = 301\,\text{nm}$, diamètre déterminée par l'ajustement sur les plans (111)). L'ajustement avec l'écart quadratique moyen le plus bas est donné pour $\alpha_{\bar{1}11} = 65 \pm 0,1°$. Cet ajustement est celui représenté sur la figure 2.17(b) (ligne noire). La loi de Bragg théorique correspondant à la diffraction sur les plans $(\bar{1}11)$, c'est-à-dire avec un angle $\alpha_{\bar{1}11} = 70,5°$ est également tracée (ligne pointillés). L'accord de l'ajustement avec les points expérimentaux est discutable, principalement à cause du faible nombre de points expérimentaux, et la courbe de Bragg théorique pour les plans $(\bar{1}11)$ est éloignée de la courbe d'ajustement.

Ces résultats tendent à montrer que l'opale d'étude présente une structure distordue, avec un angle $\alpha_{\bar{1}11} = 65 \pm 0,1°$ éloigné de l'angle théorique dans la structure cfc. Il n'est pas rare de trouver dans la littérature des études concluant (en utilisant la méthode des moindres carrés et une loi de Bragg) sur une structure distordue de l'opale. Par exemple, Romanov [67] détermine un angle $\alpha_{\bar{1}11} = 69°$ (sructure légèrement distordue) et Baryshev *et al.* [71] un angle $\alpha_{\bar{1}11} = 63°$ (structure très distordue). Cependant, il nous semble étonnant qu'une opale fabriquée par convection, méthode reconnue pour fabriquer des structures possédant un degré d'ordre élevé, puisse présenter une distorsion aussi importante de la structure cfc. Nous mettons donc en doute l'utilisation d'une loi de Bragg pour déterminer les paramètre D et n_{eff} de l'opale.

Dans la section suivante, nous mettons en évidence les limites du modèle de Bragg (indépendantes du problème évoqué plus haut quant à la détermination des paramètres de l'opale) et confirmons nos doutes par le calcul du diagramme de bandes de l'opale avec les paramètres que nous venons de déterminer.

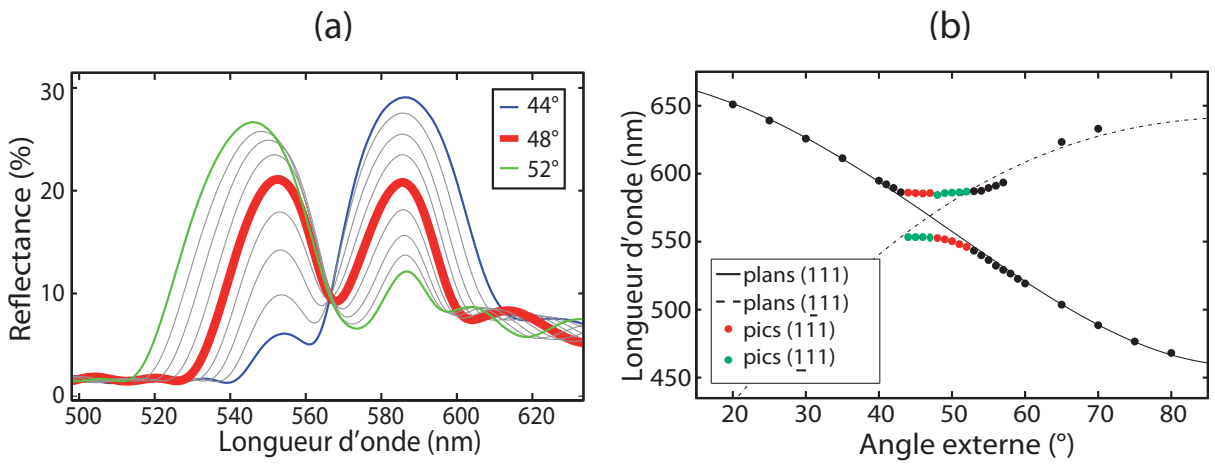

FIGURE 2.18 – (a) Spectres de réflexion spéculaire pour des angles d'incidence θ allant de 44° à 52°, par pas de 1. La courbe rouge représente la mesure à $\theta = 48°$, pour laquelle les deux pics ont la même intensité et le plus petit écart spectral. (b) Positions expérimentales en longueur d'onde des pics de réflexion en fonction de l'angle d'incidence, et lois de Bragg correspondant aux plans (111) (courbe noire) et ($\bar{1}11$) (courbe pointillés) ajustées précédemment avec les paramètres $n_{eff} = 1.37$, $D = 301$ nm et $\alpha = 65°$. Les points rouges et verts correspondent aux positions des pics de rélfexion de la figure 2.18(a) et attribués à la diffraction sur les plans (111) et ($\bar{1}11$) respectivement.

2.7.2 Limites du modèle des plans réfléchissants : anticroisement

Comme nous l'avons remarqué dans la section précédente, l'ajustement de la position des pics de réflexion principaux par une loi de Bragg correspondant à la diffraction sur les plans (111) donne un excellent accord. Seuls les points expérimentaux situés à $\theta = 45°$ et 50° s'écartent légèrement de l'ajustement (voir figure 2.17(a)). Nous décidons alors de sonder la région autour de $\theta = 50°$ avec une meilleure résolution angulaire. La figure 2.18(a) représente des mesures de la réflexion des pics sur l'opale d'étude pour des angles d'incidence allant de $\theta = 44°$ (angle pour lequel on identifie clairement la présence de deux pics) à $\theta = 52°$, par pas de 1°. Dans la zone de Brillouin, cette expérience consiste à étudier avec plus de précision les effets de la bande interdite autour du point K (voir par exemple figure 2.7(d)).

A ces angles, la position spectrale des deux pics de diffraction varie très peu. La position des pics est située soit à $\lambda = 586 \pm 1$ nm soit à $\lambda = 553 \pm 1$ nm. En revanche, leur intensité varie de façon importante. On observe l'intensité des pics à $\lambda = 553$ nm augmenter progressivement tandis que celle des pics à $\lambda = 586$ nm diminue. La somme de l'intensité des deux pics pour un angle d'incidence donné n'est pas constante, mais est comprise entre 35% et 42%, un intervalle relativement faible. L'intensité des pics mesurés avant l'apparition du second pic de $\theta = 20°$ à $\theta = 40°$ diminue de 44% à 33%, et il semble raisonnable d'affirmer que l'intensité du faisceau incident se partage entre les deux pics de diffraction. La courbe rouge est mesurée à $\theta = 48°$. A cet angle, les deux pics ont la même intensité et la somme de leurs intensités est maximale. C'est aussi à cet angle que l'écart spectral le plus petit est mesuré, avec $\Delta\lambda_{min} = 33$ nm.

On place sur la figure 2.18 ces nouveaux points expérimentaux avec les deux lois de Bragg déterminées dans la section précédente. Les points rouges et verts correspondent aux pics pré-

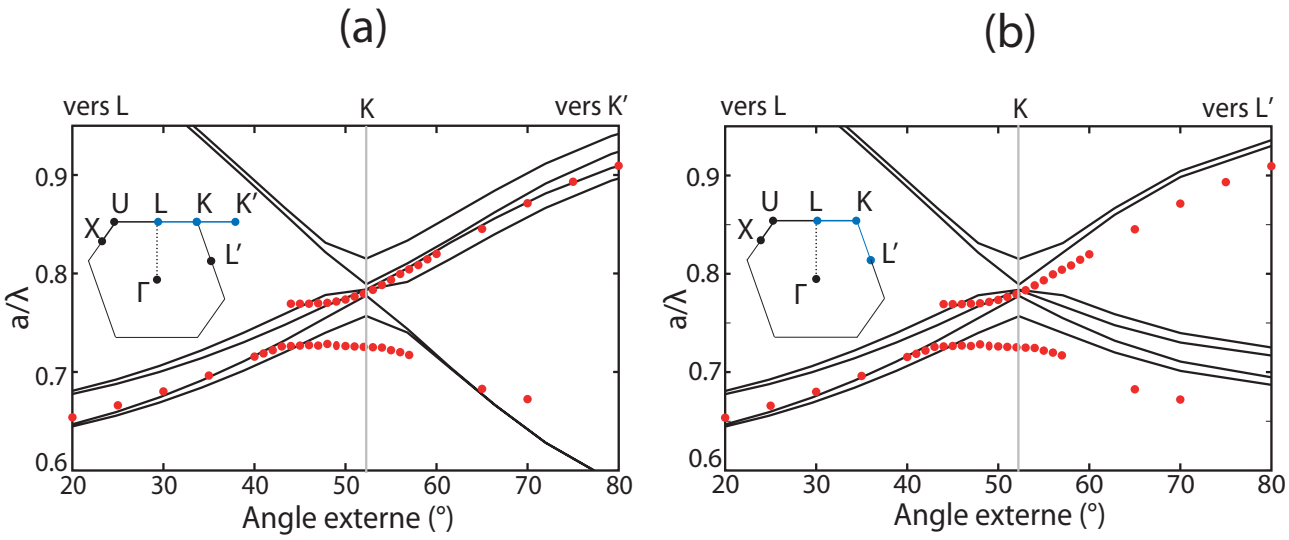

FIGURE 2.19 – (a) et (b) Diagrammes de bandes tracés dans les directions $L \to K \to K'$ et $L \to K \to L'$ respectivement (voir encarts) et calculés avec $n_{SiO_2} = 1.48$ (valeur pour $n_{eff} = 1,37$). Les valeurs des points expérimentaux (en rouge) sont reportées sur le diagramme en effectuant l'opération a/λ_{exp} avec $a = \sqrt(2)D$ et $D = 301\,\text{nm}$.

sentés sur la figure 2.18(a) et attribués aux plans (111) et ($\bar{1}$11) respectivement. Les points noirs correspondent aux points ayant servi aux ajustements précédents des figures 2.17(a) et (b), et quelques points supplémentaires (à 41°$\leq \theta \leq$ 43° et 53°$\leq \theta \leq$ 59°) dont nous n'avons pas montré les spectres sur la figure 2.18 par souci de clarté. Les courbes se croisent à $\theta = 48°$, et on voit clairement autour de cet angle les longueurs d'onde des pics de réflexion *s'écarter* des lois de Bragg : elles s'anticroisent [37, 39, 64, 73].

Dans la section suivante, nous confirmons les limites du modèle des plans réfléchissants en comparant les données expérimentales avec le diagramme de bandes de l'opale calculé avec les valeurs de l'indice effectif et du diamètre des billes ajustées par la loi de Bragg adaptée aux plans (111).

2.7.3 Diagramme de bandes : première comparaison avec les données expérimentales

Nous traçons sur les figures 2.19(a) et (b) les diagrammes de bandes de l'opale suivant les directions $L \to K \to K'$ (face de la zone de Brillouin correspondant uniquement aux plans (111)) et $L \to K \to L'$ (faces de la zone Brillouin correspondant aux plans (111) et ($\bar{1}$11)) en fonction de l'angle d'incidence externe, calculé avec un indice des billes de silice $n_{SiO_2} = 1,48$, déterminé à l'aide de la relation (2.5) et la valeur de l'indice effectif $n_{eff} = 1,37$. Les positions en longueur d'onde des pics de réflexion sont converties en valeurs de l'énergie normalisée a/λ en prenant $a = \sqrt{2}D$ et $D = 301\,\text{nm}$. Le diagramme de la figure 2.19(a) nous permet donc de comparer l'évolution des pics de diffraction sur les plans (111) (pics principaux dont la fréquence augmente avec l'angle d'incidence) pour tous les angles d'incidence, mais pas l'évolution des

pics de diffraction sur les plans $(\bar{1}11)$ (seconds pics dont la fréquence diminue avec l'angle d'incidence) qui apparaissent autour de $\theta = 50°$, tandis que le diagramme de la figure 2.19(b) nous permet de comparer l'évolution des pics de diffraction sur les plans (111) jusqu'au point K à $\theta_K = 52°$, ainsi que les pics de diffraction sur les plans $(\bar{1}11)$.

On constate sur le diagramme de la figure 2.19(a) que les fréquences des pics de diffraction sur les plans (111) sont correctement centrées dans la bande interdite. Nous avons montré dans la section 2.7.1 que ces pics étaient remarquablement bien ajustés par la loi de Bragg, et nous sommes donc en accord avec la section 2.6 où nous avions vu que les bandes interdites calculées suivant différentes directions de la structure étaient correctement décrites par les lois de Bragg adéquates (voir pour ce cas précis la figure 2.16). Par contre sur le diagramme de la figure 2.19(b), les fréquences des pics de diffraction sur les plans $(\bar{1}11)$ (à partir de $\theta \approx 50°$, pics dont la fréquence diminue avec θ) sont décalées d'une fréquence réduite $a/\lambda \approx 0,05$ soit plus de 40 nm. De plus pour les deux diagrammes, le centre de l'anticroisement expérimental à $\theta = 48°$ est décalé de 5° par rapport au point K, situé à $\theta_K = 52°$ sur le diagramme de bandes. On note qu'il est également décalé d'une trentaine de nanomètres vers les basses énergies.

Nous sommes donc confrontés au dilemme suivant :

- Notre opale est distordue, comme l'indique la valeur de $\alpha_{\bar{1}11} = 65°$ obtenue dans la section 2.7.1 et nous faisons confiance aux valeurs de $n_{eff} = 1,37$ et $D = 301\,\text{nm}$ déterminées par ajustement à la loi de Bragg sur les plans (111). Le calcul des bandes photoniques, qui considère une structure cfc compacte idéale, ne peut être comparé aux spectres de réflexion spéculaire mesurés sur notre opale.
- Notre opale possède une structure idéale et le fait que les données expérimentales suivent mal l'évolution des bandes interdites du diagramme de bandes résulte du fait que les paramètres de l'opale déterminés par ajustement à la loi de Bragg sur les plans (111) sont erronés.

Nous nous plaçons dans la seconde hypothèse. Nous sommes confortés dans ce choix par les caractérisations par AFM et par ellipsométrie, qui donnent des valeurs significativement éloignées de celles obtenues par ajustement à la loi de Bragg ($D = 338 \pm 10\,\text{nm}$ par AFM, $n_{eff} = 1,28$ ou 1,31 par ellipsométrie suivant le type d'ajustement utilisé). Cela revient aussi à dire que les pics diffractés par les plans (111) (pics principaux) ne suivent pas exactement la loi de Bragg. Pourtant, nous affirmons que cette méthode est incorrecte au moins en ce qui concerne la caractérisation de notre opale, et proposons une autre méthode, simple, pour déterminer l'indice effectif de l'opale.

L'application de cette méthode nécessite une étude détaillée de l'anticroisement des bandes au point K de la zone de Brillouin, que nous effectuons dans la section suivante.

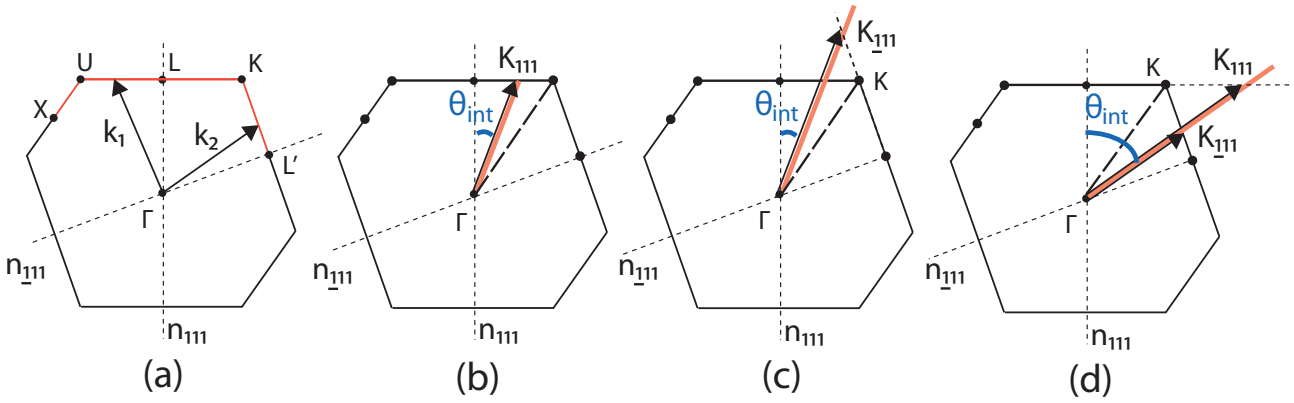

FIGURE 2.20 – (a) Coupe de la zone de Brillouin d'une structure cfc suivant le plan contenant les points L, K et Γ, et deux vecteurs d'onde $\boldsymbol{k_1}$ et $\boldsymbol{k_2}$ satisfaisant aux conditions de Laue sur les plans (111) et ($\bar{1}11$) respectivement. La ligne rouge représente le chemin à suivre pour étudier l'évolution du diagramme de bandes en fonction de l'angle d'incidence. (b) Chemin suivi (en rouge) pour tracer le diagramme de bande dans une direction θ_{int}. Le vecteur $\overrightarrow{\Gamma K}_{111}$ satisfait aux conditions de diffraction sur les plans (111). (c) En prolongeant la droite rouge du schéma (b), elle intersecte la droite (L'K) au point $K_{\bar{1}11}$ et le vecteur $\overrightarrow{\Gamma K}_{\bar{1}11}$ satisfait aux conditions de diffraction sur les plans ($\bar{1}11$).

2.8 Nouvelle méthode de détermination de l'indice effectif d'une opale

2.8.1 Etude théorique de l'anticroisement

Afin d'étudier le comportement du diagramme de bandes autour du point K, nous explorons la zone de Brillouin dans des directions particulières. Nous souhaitons observer l'évolution des bandes interdites formées par les plans (111) et ($\bar{1}11$). Dans la section 2.6, nous avions choisi des points situés sur les faces de la zone de Brillouin. Ce choix de points était équivalent à ne considérer que des vecteurs d'onde centrés en Γ et pointant sur une surface (figure 2.20(a)). Ces vecteurs d'onde satisfaisaient alors aux conditions de Laue et étaient diffractés. Par exemple dans la figure 2.20(a), les vecteurs $\boldsymbol{k_1}$ et $\boldsymbol{k_2}$ satisfont aux conditions de diffraction de Laue sur les plans (111) et ($\bar{1}11$) respectivement. Cela permettait d'étudier l'évolution de la bande interdite dans une direction donnée de la zone de Brillouin, et à l'aide d'un calcul simple nous pouvions en déduire la dépendance de la bande interdite en fonction de l'angle d'incidence.

Dans l'expérience décrite dans la section 2.4, chaque mesure nous permet de sonder la structure photonique avec un angle θ_{int} fixé (relié à l'angle d'incidence θ par la loi de Snell-Descartes). L'observation de deux pics de réflexion correspond à l'interaction de la lumière avec deux bandes interdites formées dans la direction associée à l'angle θ_{int}. Ainsi, pour observer l'évolution des bandes interdites formées autour du point K par les plans (111) et ($\bar{1}11$) à la fois, nous traçons un diagramme de bandes suivant des points placés sur une droite passant par Γ, le centre de la zone de Brillouin, et coupant la droite (LK) en un point K_{111} tel que l'angle $(\overrightarrow{\Gamma K}_{111}, \overrightarrow{\Gamma K}) = \theta_{int}$, comme schématisé sur la figure 2.20(b), où $\theta_{int} < \theta_K$. On note que

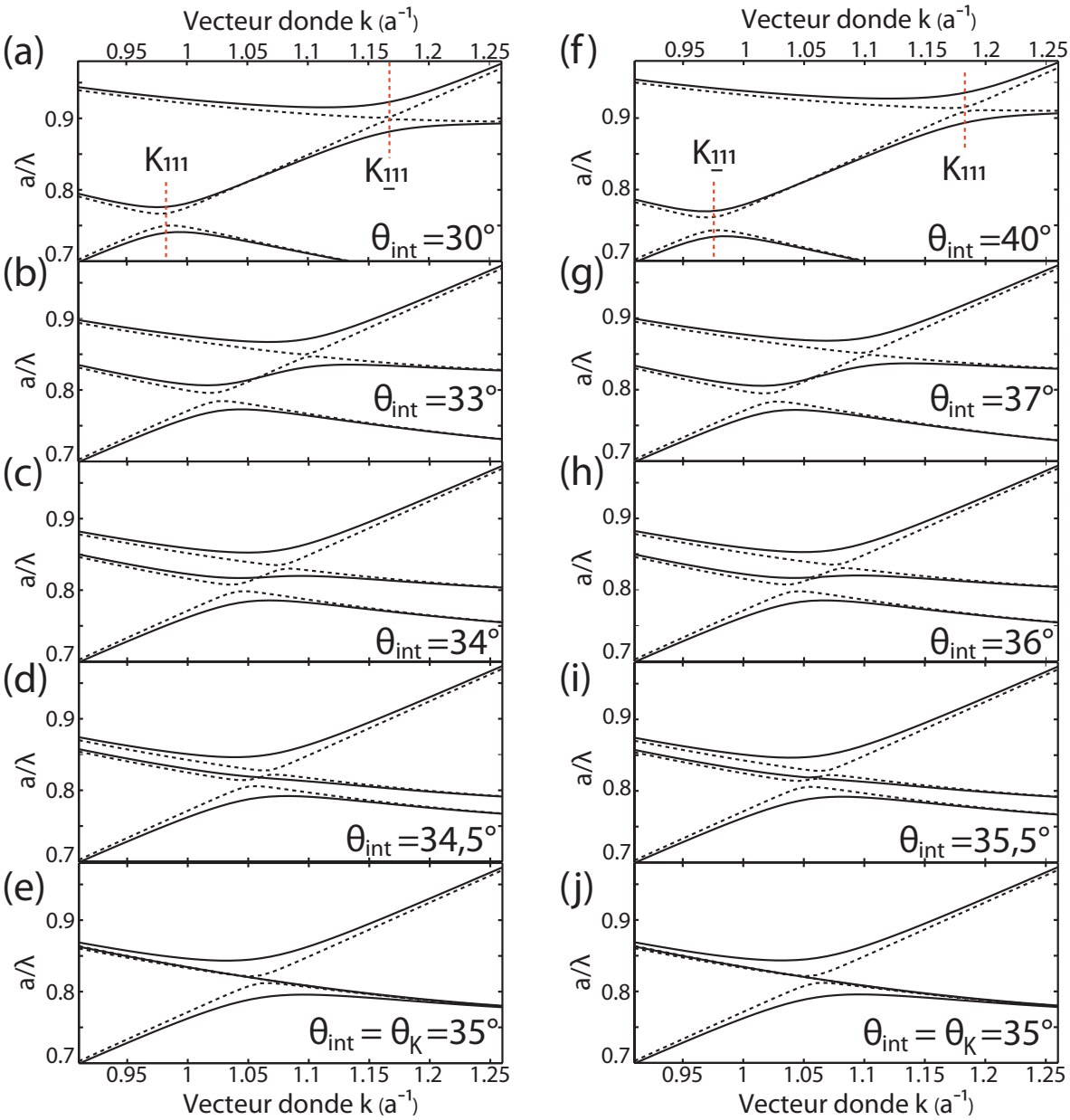

FIGURE 2.21 – Diagrammes de bandes tracés suivant un chemin passant dans la zone de Brillouin par le point Γ et un point K_{111} de la droite (LK), tel que $(\overrightarrow{\Gamma K}, \overrightarrow{\Gamma K}_{111}) = \theta_{int}$. Les diagrammes (a) à (e) sont tracés pour $\theta_{int} \leq 35°$ et les diagrammes de (f) à (j) pour $\theta_{int} \geq 35°$. Sur les diagrammes (a) et (f), les lignes rouges marquent la position du vecteur $\overrightarrow{\Gamma K}_{111}$ ou $\overrightarrow{\Gamma K}_{\bar{1}11}$, selon que la bande interdite formée soit due aux plans (111) ou ($\bar{1}$11) respectivement.

le vecteur $\overrightarrow{\Gamma K}_{111}$ satisfait aux conditions de Laue et le diagramme de bandes doit présenter une bande interdite au point K_{111} formée par les plans (111). En prolongeant cette droite au-delà du point K_{111}, on voit qu'elle intersecte également la droite (L'K) en un point $K_{\bar{1}11}$ situé en dehors de la zone de Brillouin, et le vecteur $\overrightarrow{\Gamma K}_{\bar{1}11}$ satisfait aux conditions de Laue pour les plans ($\bar{1}11$) (voir figure 2.20(c)). Le diagramme de bandes tracé pour les points situés sur la droite (ΓK_{111}) doit donc présenter deux bandes interdites aux points K_{111} et $K_{\bar{1}11}$, avec $\overrightarrow{\Gamma K}_{111} < \overrightarrow{\Gamma K}_{\bar{1}11}$. De la même façon, en prenant $\theta_{int} > \theta_K$, le chemin suivi intersecte au point $\boldsymbol{K_{\bar{1}11}}$ la surface de la zone de brillouin correspondant aux plans ($\bar{1}11$), puis la droite (LK) au point $\boldsymbol{K_{111}}$. Le diagramme de bandes correspondant doit donc présenter deux bandes interdites aux points $\boldsymbol{K_{\bar{1}11}}$ et $\boldsymbol{K_{111}}$, avec $\overrightarrow{\Gamma K}_{111} > \overrightarrow{\Gamma K}_{\bar{1}11}$.

Nous traçons ce type de diagramme de bandes pour $|\theta_K - \theta_{int}| = \pm 5°$, $\pm 2°$, $\pm 1°$, $\pm 0.5°$ et 0° (on rappelle que $\theta_K = 35,3°$). On part donc d'une direction légèrement éloignée du point K ($\theta_{int} \approx 30°$) pour se rapprocher progressivement jusqu'à la direction dans laquelle la condition de diffraction multiple est satisfaite pour le vecteur $\overrightarrow{\Gamma K}$ ($\theta_{int} = \theta_K$), puis on s'éloigne à nouveau (jusqu'à $\theta_{int} \approx 40°$). L'indice utilisé pour les billes de silice est notre indice de référence $n_{SiO_2} = 1,4$ déterminé par ellipsométrie ($n_{eff} = 1,31$). Le raisonnement que nous suivons dans cette section est qualitatif et l'utilisation d'un autre indice proche donnerait les mêmes conclusions. Ces diagrammes sont présentés sur la figure 2.21.

Chaque diagramme présente six bandes : trois bandes pour chaque polarisation. Les bandes en traits pleins correspondent à la polarisation s et les bandes en pointillés à la polarisation p [74, 75]. Pour $\theta_{int} = 30°$ et $\theta_{int} = 40°$ (figures 2.21(a) et (f) respectivement), les bandes interdites (traits rouges) apparaissent sous la forme de minima de l'écart entre deux bandes. Par exemple pour $\theta_{int} = 30°$, on observe deux bandes interdites à $\boldsymbol{k} = \overrightarrow{\Gamma K}_{111} = 0,98\,a^{-1}$ et $\boldsymbol{k} = \overrightarrow{\Gamma K}_{\bar{1}11} = 1,17\,a^{-1}$ formées par les plans (111) et ($\bar{1}11$) respectivement. Les bandes interdites pour les polarisations s et p formées par les plans (111) sont centrées en énergie normalisée à environ 0,76. Il est intéressant de remarquer que pour $\theta_{int} = 40°$, les positions des bandes interdites formées par les plans (111) et ($\bar{1}11$) sont échangées, en accord avec la symétrie suggérée par les schémas des figures 2.20(c) et (d). En effet, avec $\theta_{int} > \theta_K$ et en partant du point Γ, la première surface traversée est celle correspondant aux plans ($\bar{1}11$), puis celle correspondant aux plans (111) (voir figure 2.20(d)) et la bande interdite formée par les plans ($\bar{1}11$) est obtenue pour $\left\|\overrightarrow{\Gamma K}_{\bar{1}11}\right\| < \left\|\overrightarrow{\Gamma K}_{111}\right\|$. Pour $\theta_{int} = 33°$ et $\theta_{int} = 37°$ (figures 2.21(b) et (g) respectivement), les deux bandes intermédiaires pour les deux polarisations présentent deux extrema, et on constate que les deux bandes interdites associées se rapprochent.

Pour les angles $\theta_{int} = 34°$, 37°, 34,5° et 36,5° (figures 2.21(c), (h), (d) et (i) respectivement), les bandes interdites continuent de se rapprocher et on distingue encore les deux extrema de la bande de polarisation p d'énergie intermédiaire. En revanche, ceux des bandes de polarisation s disparaissent. Les deux bandes interdites pour la polarisation s formées par les plans (111) et ($\bar{1}11$) *fusionnent* [73]. Pour $\theta_{int} = \theta_K$, les deux extrema de la bande polarisée p disparaissent à leur tour et les deux bandes polarisées s et p se confondent. A cet angle, le vecteur $\boldsymbol{k}$ (correspondant au point de haute symétrie K dans la zone de Brillouin) satisfaisant la condition de diffraction multiple est atteint et les deux bandes interdites formées par les plans (111) et ($\bar{1}11$) fusionnent pour les deux polarisations. Cependant, la fusion n'est pas complète, c'est-à-dire

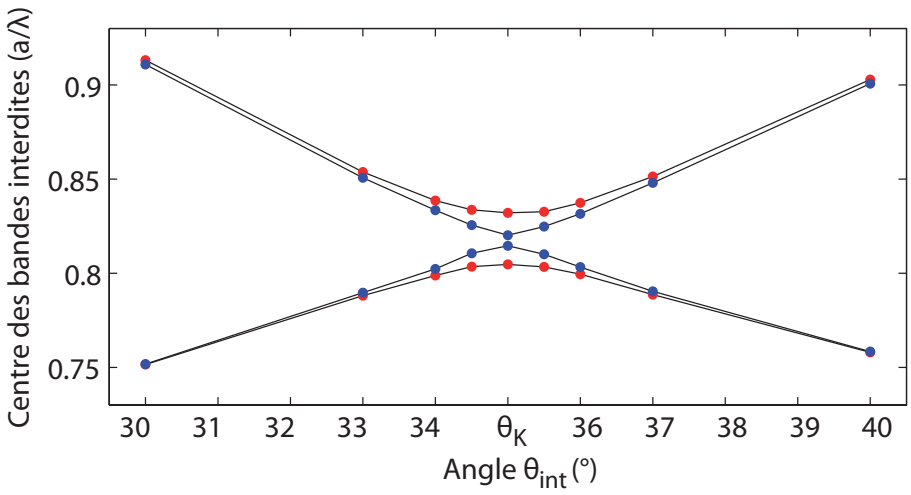

FIGURE 2.22 – Evolution de l'énergie normalisée a/λ du centre des bandes interdites polarisées s (courbes rouges) et p (courbes bleues) formées par les plans (111) et ($\bar{1}$11) en fonction de l'angle γ. L'écart minimum entre les bandes interdites de chaque polarisation est atteint pour $\gamma = 0$, c'est-à-dire le point K de la zone de Brillouin.

qu'il n'y a pas formation d'une bande interdite unique. En effet, les bandes de polarisation s et p d'énergies intermédiaires continuent de séparer les bandes de basse et de hautes énergies, et on a bien la présence de deux bandes interdites. On retrouve l'anticroisement observé expérimentalement.

Enfin, nous montrons que l'écart en énergie entre les deux bandes interdites est minimal au point K de la zone de Brillouin. La figure 2.22 représente l'évolution de la fréquence normalisée a/λ du centre des bandes interdites pour les polarisations s (courbe rouge) et p (courbe bleue) en fonction de l'angle θ_{int}. On reconnaît la forme de l'anticroisement observée dans la figure 2.18(b). On voit que plus l'angle θ_{int} se rapproche de θ_K, plus l'écart en énergie entre les centres des bandes interdites de chaque polarisation diminue, et l'écart en énergie est minimum pour $\theta_{int} = \theta_K$, c'est-à-dire au point K.

Nous avons montré que l'écart en énergie entre les deux bandes interdites formées par les plans (111) *et* ($\bar{1}$11) *est minimal au point K de la zone de Brillouin. Dans la section précédente, nous avons vu que le plus petit écart en longueur d'onde entre les deux pics de réflexion était mesuré pour l'angle d'incidence* $\theta = 48°$ *(courbe rouge dans la figure 2.18(a)). Nous en concluons que cet angle correspond à l'angle externe pour lequel le vecteur d'onde de l'onde réfractée dans l'opale est colinéaire à* $\overrightarrow{\Gamma K}$. *Autrement dit, en traçant le diagramme de bandes dans la direction* $L \rightarrow K \rightarrow L'$ *en fonction de l'angle externe* θ, *le point K doit se trouver à* $\theta = 48°$.

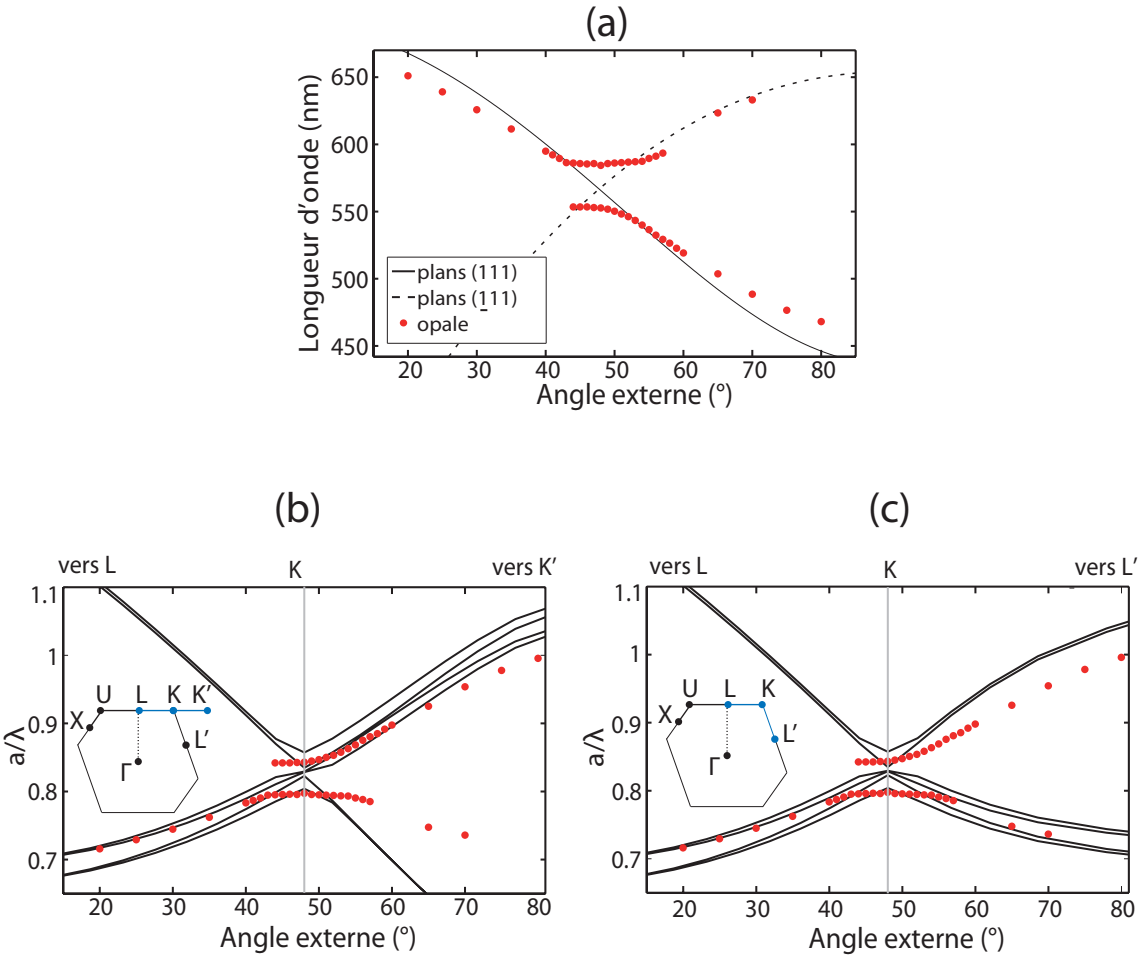

FIGURE 2.23 – (a) Lois de Bragg adaptées aux plans (111) (courbe noire) et ($\bar{1}$11) (courbe pointillés) ajustées sur les positions en longueur d'onde des pics de réflexion expérimentaux (points rouges). Les paramètres des ajustements sont $n_{eff} = 1,29$, $D = 329\,\text{nm}$ et $\alpha_{\bar{1}11} = 70,2°$. (b) et (c) Diagramme de bandes dans les directions $L \rightarrow K \rightarrow L'$ et $L \rightarrow K \rightarrow K'$ respectivement (voir encarts) et calculés avec $n_{SiO_2} = 1,38$ déterminé avec $n_{eff} = 1,29$. Les longueurs d'onde expérimentales sont converties en énergie normalisée a/λ où $a = \sqrt{2}D$ et $D = 329\,\text{nm}$.

2.8.2 Détermination de l'indice effectif de l'opale par centrage de l'anticroisement

Nous proposons une méthode simple pour déterminer l'indice d'une opale, fondée sur la supposition que l'opale en question possède une structure cfc idéale (non distordue) : imposer que la valeur de l'indice effectif de l'opale soit celle permettant à l'onde d'incidence θ de se réfracter dans l'opale avec un angle $\theta_{int} = \theta_K$ soit telle que l'anticroisement ait bien pour $\theta_{int} = \theta_K$:

$$n_{air} \sin\theta = n_{eff} \sin\theta_K \tag{2.8}$$

Avec un anticroisement mesuré à $\theta = 48°$, on obtient $n_{eff} = 1,29$. Cette valeur de l'indice effectif est proche des valeurs déterminées par ellipsométrie, qui sont $n_{eff} = 1,28$ ou 1,31 suivant que l'ajustement soit de type Cauchy ou Maxwell-Garnett respectivement.

Nous déterminons à présent le diamètre des billes D et l'angle α entre les plans (111) et ($\bar{1}$11). Nous utilisons l'ajustement par les lois de Bragg, mais cette fois en fixant la valeur de n_{eff}. Ces ajustements sont présentés sur la figure 2.23(a), où les courbes noires et pointillés représentent les lois de Bragg ajustées en utilisant les relations (2.6) (plans (111), donne D) et (2.7) (plans ($\bar{1}$11), donne α) respectivement. On constate un écart aux petits et grands angles entre les points expérimentaux et la loi de Bragg adaptée aux plans (111) (courbe noire), mais l'ajustement reste satisfaisant. De plus, les valeurs ajustées de D et α sont $D = 329\,\text{nm}$ et $\alpha = 70°$. Le diamètre des billes est à présent compatible avec la valeur mesurée par AFM $D = 338 \pm 10\,\text{nm}$, et l'angle $\alpha_{\bar{1}11}$ est très proche de l'angle théorique de 70,56°.

Les figures 2.23(b) et (c) représentent les points expérimentaux reportés sur les diagrammes de bandes tracés dans les directions $L \to K \to K'$ (faces correspondant aux plans (111) uniquement) et $L \to K \to L'$ (faces correspondant aux plans (111) jusqu'à $\theta = \theta_K = 48°$ et ($\bar{1}$11) pour $\theta > \theta_K$). Ces diagrammes sont calculés pour $n_{SiO_2} = 1,38$ déterminé avec la relation (2.5) et la valeur $n_{eff} = 1,29$. L'anticroisement expérimental est à présent centré au point K, ce qui était attendu puisque l'indice effectif a été choisi dans ce but. On constate cependant qu'il n'est plus décalé en énergie, comme sur les figures 2.19(a) et (b). Pour $\theta \leq 40°$, l'énergie des pics de diffraction est légèrement décalée vers les hautes énergies par rapport au centre de la bande interdite, mais suit bien son évolution avec l'angle d'incidence. Pour $\theta \geq 60°$, elle est décalée vers les basses énergies, en particulier aux très grands angles. En revanche, les pics de diffraction sur les plans ($\bar{1}$11) (pics de réflexion secondaires dont la fréquence diminue avec l'angle d'incidence) sont remarquablement bien centrés sur la bande interdite formée dans la direction $K \to L'$ (figure 2.23(c)).

Notre nouvelle méthode de détermination de l'indice effectif de l'opale par centrage de l'anticroisement expérimental au point K du diagramme de bandes nous a permis d'effectuer une caractérisation des paramètres D et n_{eff} de notre échantillon en accord avec les mesures par AFM et ellipsométrie. La comparaison entre les points expérimentaux et le diagramme de bandes calculé avec ces nouveaux paramètres est très satisfaisante. Nous préconisons donc l'emploi de cette méthode pour la caractérisation d'une opale, plutôt que celle par ajustement aux lois de Bragg qui donne des valeurs de D et n_{eff} erronées. De plus, la valeur de l'indice

effectif déterminée par notre méthode va nous permettre, dans les sections suivantes, d'expliquer un certain nombre de phénomènes dont la compréhension est mal maîtrisée : l'observation du second pic de réflexion à un angle de détection spéculaire (section 2.9), et la quasi annulation du premier pic de réflexion en polarisation p à $\theta \approx 50°$ (section 2.10).

2.9 Observation du second pic en réflexion spéculaire

Dans notre expérience de la section 2.4, le second pic de réflexion est observé aux angles de détection spéculaires, définis par rapport à la normale aux plans (111), c'est-à-dire la direction verticale. Nous avons vu dans la section 2.8.2 que l'évolution avec l'angle d'incidence de la longueur d'onde de ces pics était bien décrite par celle de la loi de Bragg adaptée aux plans $(\bar{1}11)$. Cependant, cette approche pose un problème important : la faisceau diffracté par ces familles de plans inclinés est réfléchi avec un angle spéculaire *par rapport à la normale à ces plans*, et se propage alors vers l'intérieur du cristal (voir figure 2.15(c)). Cela ne correspond donc pas à la géométrie de notre expérience et nous ne devrions pas être en mesure de le détecter.

2.9.1 Modèle de la mâcle par réflexion

Une hypothèse a été avancée par Baryshev *et al.* [71], qui proposent l'intervention dans le trajet optique de l'onde d'une troisième famille de plans correspondant à des plans $(\bar{1}11)$, disposés de façon symétrique par rapport à la première famille de plans $(\bar{1}11)$. Cette proposition est fondée sur la supposition que l'opale d'étude est une mâcle par réflexion (en anglais « twinned-opal » [38, 70], c'est-à-dire que l'empilement des billes lors de la synthèse de l'opale varie d'un monodomaine à l'autre entre un empilement de type ABCABC... ou ACBACB..., les deux empilements étant équiprobables.

Ces deux empilements des billes confèrent à la structure de l'opale une symétrie particulière, et justifie pour les auteurs de la référence [71] la présence d'une seconde famille de plans $(\bar{1}11)$, symétrique à la première. La condition spéculaire est alors respectée si, après réfraction à l'interface air/opale et réflexion sur la première famille de plans $(\bar{1}11)$, l'onde se propage parallèlement aux plans (111), c'est-à-dire avec une direction horizontale. Le trajet restant (réflexion sur la seconde famille de plans $(\bar{1}11)$ et réfraction à l'interface opale/air) est alors symétrique au trajet déjà effectué, et l'onde est réfractée hors de l'opale avec un angle identique à l'angle d'incidence. Cette géométrie assure également que la longueur d'onde de l'onde diffractée la seconde fois est la même que lors de la première diffraction (distance entre les plans et angles d'incidence identiques pour les deux familles de plans $(\bar{1}11)$).

Les auteurs de la référence [71] montrent alors que pour un angle d'incidence $\theta = 46°$ (angle pour lequel l'intensité des deux pics de réflexion est égale), un indice effectif $n_{eff} = 1,286$ (déterminé par ajustement à la la loi de Bragg) et des plans $(\bar{1}11)$ inclinés d'un angle $\alpha_{\bar{1}11} = 62°$ (structure très distordue), l'onde ressort de l'opale avec un angle $\theta_r = 46°$.

Ce modèle repose sur un nombre d'hypothèses élevé (opale distordue, nécessité d'une symétrie parfaite entre les deux familles de plans $(\bar{1}11)$, trajet optique très long d'un monodomaine

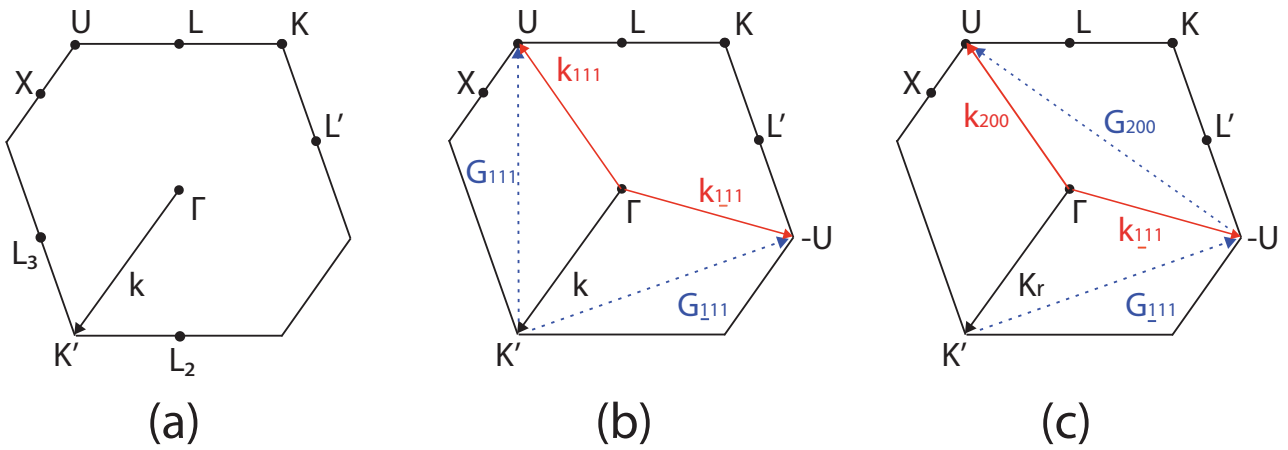

FIGURE 2.24 – Diagrammes de Laue en régime de diffraction multiple : (a) le vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ satisfait aux conditions de diffraction pour les plans (111) et ($\bar{1}$11), (b) le vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ est diffracté selon deux vecteurs d'onde $\boldsymbol{k}_{111}$, orienté avec un angle spéculaire, et $\boldsymbol{k}_{\bar{1}11}$, orienté vers l'intérieur du cristal, définis respectivement par $\boldsymbol{G}_{111} = \boldsymbol{k} - \boldsymbol{k}_{111}$ et $\boldsymbol{G}_{\bar{1}11} = \boldsymbol{k} - \boldsymbol{k}_{\bar{1}11}$ où $\boldsymbol{G}_{111}$ et $\boldsymbol{G}_{\bar{1}11}$ sont des vecteurs primitifs de la maille réciproque, (c) le vecteur d'onde $\boldsymbol{k}_{\bar{1}11}$ satisfait aux conditions de diffractions sur les plans (200) et l'onde diffractée a pour vecteur d'onde $\boldsymbol{k}_{200}$ orienté avec un angle spéculaire et défini par $\boldsymbol{G}_{200} = \boldsymbol{k}_{\bar{1}11} - \boldsymbol{k}_{200}$, où $\boldsymbol{G}_{200}$ est un vecteur primitif de la maille réciproque .

à l'autre de l'onde se propageant dans l'opale). De plus, l'écart quantitatif pour les angles différents de $\theta = 46°$ est significatif, ce qui peut s'expliquer par la difficulté à déterminer un indice effectif de l'opale correct à partir de la loi de Bragg.

Cependant, l'intérêt qualitatif de ce modèle est important, puisqu'il propose un trajet permettant à l'onde de ressortir de l'opale (et non vers l'intérieur de l'opale). Nous proposons de faire intervenir la famille de plans (200), et expliquons notre choix par l'étude des vecteurs d'onde satisfaisant aux conditions de Laue dans la zone de Brillouin de l'opale.

2.9.2 Réflexion spéculaire et conditions de Laue

Dans cette section, nous montrons qu'un vecteur d'onde satisfaisant à des conditions de Laue particulières peut être diffracté par les deux familles de plans ($\bar{1}$11) et (200), et que les deux vecteurs d'onde diffractés ressortent de l'opale avec un angle spéculaire. Nous rappelons que la condition de Laue est satisfaite lorsque l'extrémité d'un vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ pointe le plan bissecteur d'un vecteur $\boldsymbol{G}$ du réseau réciproque. Le vecteur d'onde diffracté $\boldsymbol{k'}$ est alors défini par la relation $\boldsymbol{G} = \boldsymbol{k'} - \boldsymbol{k}$ où $\boldsymbol{G}$ est un vecteur du réseau réciproque (voir chapitre 1, section 1.1.2).

Les figures 2.24(a), (b) et (c) représentent des tranches de la zone de Brillouin suivant le plan contenant les points Γ, X, U, L, K et L'. Dans ces figures, le vecteur noir est le vecteur incident, les vecteurs rouges sont les vecteurs diffractés, et les vecteurs bleus pointillés sont des vecteurs de la maille réciproque. Rappelons qu'un vecteur d'onde dont l'extrémité est en contact avec la face de la 1ZB de centre le point de haute symétrie U, L ou L' est diffracté

par les plans (200), (111) ou ($\bar{1}$11) respectivement. Notons également que les points de haute symétrie K', U', L_2 et L_3 que nous avons ajoutés (par rapport aux schémas considérés jusqu'à présent) sont, par symétrie parfaitement équivalents aux points K, U, L et L'.

Considérons dans la figure 2.24(a) le vecteur d'onde incident $\boldsymbol{k} = \overrightarrow{\Gamma K'}$. L'extrémité de ce vecteur est en contact avec deux faces de la 1ZB à la fois, l'une de centre L_2 l'autre de centre L_3. Le vecteur $\boldsymbol{k}$ satisfait donc aux conditions de Laue sur les plans (111) et ($\bar{1}$11) respectivement. Les vecteurs d'onde diffractés $\boldsymbol{k}_{111}$ et $\boldsymbol{k}_{\bar{1}11}$ sont alors définis par les relations $\boldsymbol{G}_{111} = \boldsymbol{k} - \boldsymbol{k}_{111}$ et $\boldsymbol{G}_{\bar{1}11} = \boldsymbol{k} - \boldsymbol{k}_{\bar{1}11}$ respectivement, où $\boldsymbol{G}_{\mathbf{111}}$ et $\boldsymbol{G}_{\bar{\mathbf{1}}\mathbf{11}}$ sont des vecteurs primitifs de la maille réciproque (voir figure 2.24(b)).

Le vecteur $\boldsymbol{k}_{111}$ est orienté avec un angle spéculaire, ce qui n'est pas le cas du vecteur $\boldsymbol{k}_{\bar{1}11}$ qui est orienté vers l'intérieur du cristal. Cependant, l'extrémité du vecteur $\boldsymbol{k}_{\bar{1}11}$ pointe à présent sur la face de la zone de Brillouin correspondant aux plans (200) et satisfait aux conditions de Laue pour cette famille de plans. L'onde est alors diffractée une seconde fois et son vecteur d'onde est défini par $\boldsymbol{G}_{200} = \boldsymbol{k}_{\bar{1}11} - \boldsymbol{k}_{200}$, où $\boldsymbol{G}_{200}$ est un vecteur primitif de la maille réciproque, comme représenté sur la figure 2.24(c). On a alors $\boldsymbol{G}_{111} = \boldsymbol{G}_{\bar{1}11} + \boldsymbol{G}_{200}$ et le vecteur diffracté $\boldsymbol{k}_{200}$ est orienté avec un angle spéculaire par rapport au vecteur d'onde incident $\boldsymbol{k}$.

On note enfin que $\boldsymbol{k}_{200} = \boldsymbol{k}_{111}$, c'est-à-dire que la longueur d'onde des deux ondes diffractées est la même. Ce n'est pas le cas expérimentalement puisque on observe deux pics de réflexion nettement séparés spectralement. Cependant, ce modèle ne prend pas en compte le phénomène d'anticroisement des bandes étudié dans la section 2.8.1.

Nous avons donc montré qu'en condition de diffraction multiple les deux ondes diffractées peuvent ressortir de l'opale avec un angle spéculaire. Nous proposons à présent de démontrer cette condition avec un point de vue différent. Dans la section 2.8.2, nous avons déterminé à l'aide d'une méthode originale une valeur de l'indice effectif de l'échantillon $n_{eff} = 1,29$ permettant d'accorder la longueur d'onde des pics de réflexion au diagramme de bande de l'opale. Nous utilisons cette valeur pour valider ce modèle et démontrer deux points importants concernant l'observation du second pic en réflexion spéculaire :

- l'onde d'incidence $\theta = 48°$ et réfractée à l'interface air/opale ressort bien de l'opale avec un angle $\theta_r = 48°$, c'est-à-dire que la condition spéculaire observée dans l'expérience est respectée,
- la longueur d'onde de l'onde d'incidence $\theta = 48°$ et diffractée successivement par les plans ($\bar{1}$11) et (200) correspond à la longueur d'onde observée expérimentalement.

2.9.3 Condition spéculaire

Nous démontrons avec la figure 2.25 et des calculs d'angles que la condition spéculaire est respectée lorsque l'angle réfracté à la surface de l'opale est égal à $\theta_{int} = 35,3°$, donc que le vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ de l'onde réfractée est colinéaire à $\overrightarrow{\Gamma K}$. Nous considérons pour l'instant que $\|\boldsymbol{k}\|$ satisfait aux conditions de Bragg sur les plans ($\bar{1}$11) et (200). Cela revient à considérer les plans comme des miroirs. Nous calculerons la longueur d'onde de l'onde diffractée dans la section suivante.

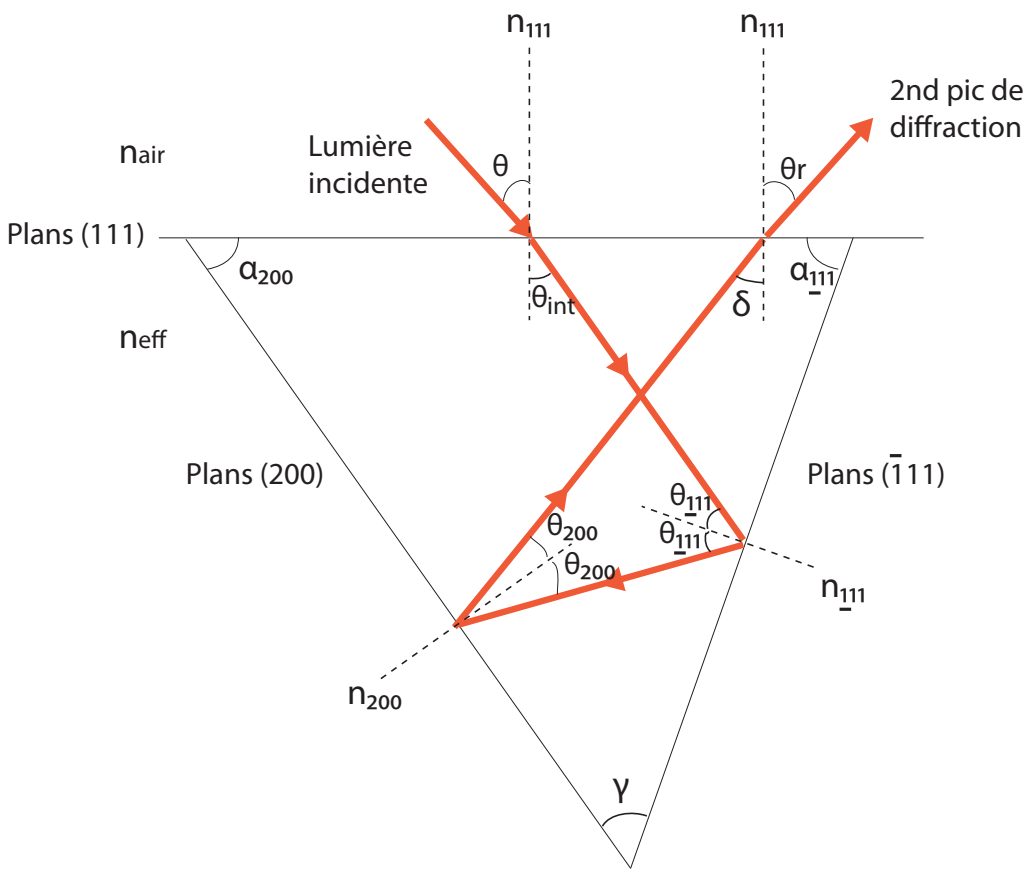

FIGURE 2.25 – Diffractions successives sur les plans ($\bar{1}11$) puis (200). On considère que les conditions de diffraction d'ordre 0 (réflexion spéculaire) sur ces plans sont respectées. Le faisceau doublement diffracté est réfracté vers le milieu extérieur avec un angle spéculaire si $\delta = \theta_{int}$. Ce schéma est équivalent au diagramme de Laue de la figure 2.24(c).

Nous définissons les angles de la figure 2.25. L'angle θ est l'angle d'incidence du faisceau dans l'opale et l'angle θ_{int} l'angle de réfraction. L'angle $\theta_{\bar{1}11}$ est l'angle d'incidence sur les plans ($\bar{1}11$) qui forment un angle $\alpha_{\bar{1}11}$ avec les plans (111). L'angle $\theta_{\bar{1}11}$ est l'angle de réflexion spéculaire sur les plans ($\bar{1}11$). L'angle θ_{200} est l'angle incident sur les plans (200) qui forment un angle α_{200} avec les plans (111). C'est également l'angle de réflexion spéculaire sur les plans (200). L'angle δ est l'angle formé par le faisceau avec la normale aux plans (111) avant d'être réfracté vers le milieu extérieur avec un angle θ_r. L'angle γ est l'angle entre les plans ($\bar{1}11$) et (200). Nous cherchons à montrer que $\delta = \theta_{int}$ si $\theta_{int} = \theta_K = \arccos(\sqrt{3}/3) \approx 35,3°$ (condition de diffraction multiple d'après le diagramme de Laue de la figure 2.24(c)), sachant que $\alpha_{\bar{1}11} = 2\arccos(2/\sqrt{6}) \approx 70,5°$ et $\alpha_{200} = \arccos(\sqrt{3}/3) \approx 54,7°$ (angles théoriques des plans ($\bar{1}11$) et (200)). On a les relations suivantes :

$$\theta_{\bar{1}11} = \alpha_{\bar{1}11} - \theta_{int} \tag{2.9}$$

$$\begin{aligned} \gamma &= \pi - \alpha_{200} - \alpha_{\bar{1}11} \\ \text{et} \quad \gamma &= \theta_{\bar{1}11} + \theta_{200} \\ \text{soit} \quad \theta_{200} &= \pi - \alpha_{200} - \alpha_{\bar{1}11} - \theta_{\bar{1}11} \end{aligned} \tag{2.10}$$

$$\begin{aligned} \delta &= \alpha_{200} - \theta_{200} \\ &= 2\alpha_{200} + \alpha_{\bar{1}11} + \theta_{\bar{1}11} - \pi \\ &= 2(\alpha_{200} + \alpha_{\bar{1}11}) - \theta_{int} - \pi \end{aligned} \tag{2.11}$$

Avec les valeurs analytiques proposées plus haut, on obtient $\delta \approx 35,3°= \theta_{int}$. Nous avons donc montré que pour $\theta_{int} = \theta_K$, les réflexions successives sur les plans $(\bar{1}11)$ et (200) permettent au faisceau de ressortir avec un angle spéculaire, soit $\theta_r = 48°$ avec $n_{eff} = 1,29$.

Il est important de préciser que la condition spéculaire n'est respectée que pour l'angle d'incidence interne $\theta_{int} = \theta_K$, et donc l'angle d'incidence externe $\theta = 48°$. Par exemple, pour $\theta = 47°$, la relation 2.11 donne $\theta_r = 49°$, alors qu'on observe bien le second pic de diffraction dans le spectre de la figure 2.8 à l'angle de détection spéculaire. Cette contradiction s'explique si la diffusion du second pic de diffraction est importante. D'ailleurs, le fait que nous l'observions jusqu'à des angles très élevés (jusqu'à $\theta = 70°$) va dans le sens de cette hypothèse. Des expériences préliminaires en cours dans l'équipe montrent que pour des angles différents de $\theta = 48°$, l'intensité du second pic de diffraction est maximale pour des angles de détection différents de l'angle spéculaire. Ces expériences montrent que l'écart entre l'angle spéculaire et l'angle pour lequel le maximum d'intensité est mesuré peut atteindre 10°, alors que l'intensité du premier pic de diffraction chute rapidement pour des angles différents de l'angle spéculaire. La diffusion du second pic de diffraction n'est donc pas négligeable, et ces expériences tendent à confirmer qu'il est possible de le détecter pour des angles différents de l'angle spéculaire, sans pour autant remettre en cause le modèle présenté sur la figure 2.25.

2.9.4 Longueur d'onde de l'onde deux fois diffractée

Nous avons montré qu'il était possible d'observer le second pic de diffraction avec un angle spéculaire si $r_{111} = 35,3°$. Pour cela, nous avons supposé que les conditions de Bragg sur les plans $(\bar{1}11)$ et (200) étaient respectées. D'après le diagramme de Laue de la figure 2.24(c), le vecteur d'onde doublement diffracté est tel que $\boldsymbol{k}_{200} = \boldsymbol{k}_{111}$, ce qui revient à dire que la longueur d'onde des deux pics de diffraction doit être la même. Nous montrons que c'est effectivement le cas d'après les lois de Bragg. En utilisant les angles définis sur la figure 2.25 et d'après la relation (2.7), (2.9) et (2.11), les longueurs d'ondes $\lambda_{\bar{1}11}$ et λ_{200} répondant aux conditions d'interférences constructives respectivement sur les plans $(\bar{1}11)$ et (200) sont données par les lois de Bragg suivantes :

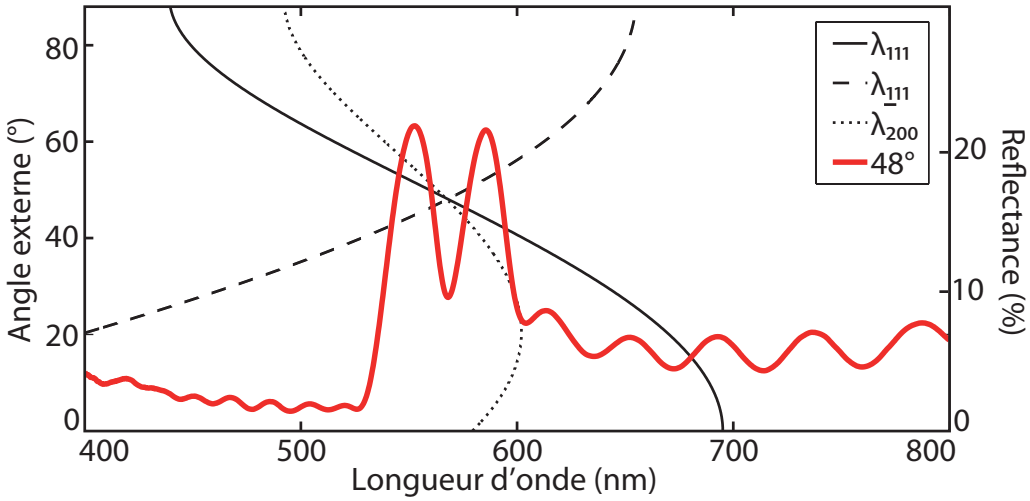

FIGURE 2.26 – Angle d'incidence externe en fonction des longueurs d'onde diffractées par les plans (111) (courbe noire), ($\bar{1}$11) (courbe pointillés longs) et (200) (courbe pointillés court) déterminées par les lois de Bragg (2.6),(2.12) et (2.13) respectivement. La courbe rouge correspond au spectre de réflexion spéculaire mesuré à $\theta = 48°$. Les deux courbes se coupent à $\theta = 48°$ et $\lambda = 567\,\text{nm}$, entre les deux pics de réflexion de la mesure à $\theta = 48°$.

$$\begin{aligned} \lambda_{\bar{1}11} &= 2\sqrt{2/3}\, D\, n_{eff}\, \sqrt{1-\sin^2\theta_{\bar{1}11}} \\ &= 2\sqrt{2/3}\, D\, n_{eff}\, \sqrt{1-\sin^2(\alpha_{\bar{1}11}-\theta_{int})} \qquad (2.12) \\ \text{et} \quad \lambda_{200} &= \sqrt{2}\, D\, n_{eff}\, \sqrt{1-\sin^2\beta} \\ &= \sqrt{2}\, D\, n_{eff}\, \sqrt{1-\sin^2(\pi-\alpha_{200}-2\alpha_{\bar{1}11}+r_{111})} \qquad (2.13) \end{aligned}$$

En prenant les valeurs $n_{eff} = 1,29$, $D = 329\,\text{nm}$ et les angles théoriques $\alpha_{\bar{1}11} = 70,5°$ et $\alpha_{\bar{1}11} = 54,7°$, on trace sur la figure 2.26 l'angle d'incidence externe (relié à l'angle θ_{int} par la relation de Snell-Descartes $\sin\theta = n_{eff}\,\sin\theta_{int}$) en fonction des longueurs d'onde diffractées $\lambda_{\bar{1}11}$ (courbe brisée), λ_{200} (courbe pointillée) et λ_{111} (calculées avec la relation 2.6, courbe pleine). La courbe rouge représente le spectre de réflexion spéculaire mesuré à $\theta = 48°$, et dont les deux pics de réflexion se situent à 553 nm et 584 nm. Les courbes correspondant aux longueurs d'onde diffractées $\lambda_{\bar{1}11}$, λ_{200} et λ_{111} se croisent à $\theta = 48°$ et $\lambda = 568\,\text{nm}$, exactement entre les deux pics de réflexion.

Les lois de Bragg ne prennent pas en compte l'anticroisement des bandes interdites. Le fait que les lois de Bragg se croisent signifie que si l'anticroisement n'existait pas, nous observerions un pic de diffraction unique à 568 nm, et ce pic serait la somme du pic diffracté par les plans (111) et de celui diffracté par les plans ($\bar{1}$11) puis (200). Le couplage entre les bandes interdites apporte une perturbation qui font *se repousser* les bandes interdites, et on observe expérimentalement deux pics de diffraction au lieu d'un seul. Le fait que la longueur d'onde de ce pic unique se situe exactement entre les deux pics de réflexion est donc inhérent à l'utilisation des lois de Bragg. Nous en déduisons que l'accord entre les données expérimentales et notre théorie est

satisfaisante.

Reste le problème des longueurs d'onde diffractées pour des angles d'incidence $\theta \neq 48°$. En effet, notre démonstration n'est valable que pour $\theta = 48°$, et pour $\theta \neq 48°$ les lois de Bragg ne se croisent plus. Ainsi, d'après les lois de Bragg, nous ne devrions pas observer le second pic de diffraction. Pourtant, nous l'observons clairement sur un intervalle angulaire large. De plus, pour $\theta < 48°$ et $49° \leq \theta \leq 54°$, sa longueur d'onde n'est quasiment pas modifiée (voir figure 2.18), ce qui n'est pas cohérent avec une loi de Bragg. En ce qui concerne ce dernier point, nous supposons qu'à mesure que l'on s'écarte de $\theta = 48°$, la perturbation due au couplage des bandes diminue progressivement et de telle sorte que les pics observés expérimentalement ne se déplacent pas en longueur d'onde. L'observation du second pic sur un intervalle angulaire large rejoint le problématique évoquée dans la section précédente, et des travaux sont en cours pour y répondre.

Nous avons proposé une réponse à une question jusqu'ici irrésolue dans la littérature : l'observation dans les conditions spéculaires du pic de réflexion secondaire sur une opale s'explique par deux réflexions de Bragg successives sur les plans $(\bar{1}11)$ *et (200) de l'opale. Nous avons validé cette hypothèse pour une onde d'incidence* $\theta = 48°$*, en calculant l'angle avec lequel cette onde ressort de l'opale et sa longueur d'onde, qui remplit les conditions d'interférences constructives sur les plans* $(\bar{1}11)$ *et (200). L'accord avec les données expérimentales est satisfaisant. Nous soulignons l'importance du rôle joué par notre méthode de centrage de l'anticroisement expérimental pour déterminer la valeur de l'indice effectif de l'opale, valeur sans laquelle il n'aurait pas été possible de valider notre hypothèse.*

2.10 Etude en polarisation

Nous terminons ce chapitre par une étude de la réflexion spéculaire résolue en polarisation sur l'opale d'étude. L'interaction opale/lumière polarisée est un sujet sur lequel la communauté scientifique tente d'apporter des réponses depuis plusieurs années. En effet, la lumière polarisée s ou p est couplée différemment avec le cristal photonique, ce qui résulte en une forte anisotropie. En particulier, l'intensité du pic de réflexion polarisé p atteint un minimum, voire s'annule, à un angle que les différents modèles existants prédisent, sans parvenir à le décrire complètement, c'est-à-dire quel que soit le type d'opale. Dans le cas des opales à faible contraste d'indice (écart entre l'indice des billes et celui du milieu environnant $\Delta n << 1$), le phénomène est décrit de façon satisfaisante par le modèle de la diffraction par des plans pour lequel existe un angle où l'onde polarisée p n'est plus diffractée [68, 76]. Par contre, pour les opales à contraste d'indice intermédiaire, c'est-à-dire avec un rapport $n_{billes} : n_{milieu}$ de l'ordre de 1.5 :1, l'angle prédit par le modèle de la diffraction par des plans ne correspond plus à celui observé et le phénomène est décrit par un effet Brewster classique [63, 64]. Les formulations de ces deux modèles présentent des similitudes mais décrivent en réalité deux effets différents et nous y reviendrons plus tard.

Nous avons déterminé dans la section 2.8.2 l'indice des billes de silice $n_{SiO_2} = 1,38$, et notre opale rentre donc dans la catégorie des opales à contraste d'indice intermédiaire. Dans cette section, nous présentons des spectres de réflexion spéculaire polarisée mesurés sur notre opale d'étude. Puis nous précisons le problème de l'interaction opale/lumière polarisée p évoqué plus

haut. Nous testerons ensuite les deux modèles (diffraction sur des plans et effet Brewster) sur nos mesures, ce qui nous donnera également l'occasion de voir si l'indice effectif déterminé par notre méthode du centrage de l'anticroisement permet de faire avancer la problématique. Enfin, nous conclurons ce chapitre.

2.10.1 Spectres polarisés s et p

De la même façon que pour les spectres de réflexion spéculaire non polarisés, nous effectuons des mesures en améliorant la résolution angulaire. La figure 2.27(a) représente les spectres de la réflexion spéculaire polarisés s, de $\theta = 44°$ à $\theta = 52°$ pour les spectres polarisés s, par pas de 1°. On observe un comportement identique aux spectres non polarisés pour ces angles, c'est-à-dire une très faible variation de la position spectrale des pics de réflexion, mais une variation importante de leur intensité. L'intensité des deux pics de réflexion est égale pour $\theta = 48°$ (courbe rouge). Le plus petit écart spectral entre les deux pics est également mesuré à cet angle et vaut $\Delta\lambda_{min} = 33\,\text{nm}$, identique à l'écart mesuré sur le spectre de réflexion non polarisé mesuré au même angle. Nous en déduisons que la méthode du centrage de l'anticroisement que nous avons développée dans la section 2.8.2 permet de déterminer une valeur de l'indice effectif de l'opale identique, qu'elle soit appliquée sur des spectres non polarisés ou polarisés s.

La figure 2.27(b) présente les spectres de réflexion spéculaire polarisés p de $\theta = 50°$ à $\theta = 58°$, par pas de 1°. Contrairement aux spectres polarisés s, on n'observe ni le second pic de réflexion, ni la stagnation sur plusieurs angles d'incidence de la longueur d'onde du pic de réflexion. L'intensité du pic baisse jusqu'à un minimum de 2% de réflexion pour $\theta_{min} = 54°$. La réflexion est donc très faible, mais le pic ne disparaît jamais complètement.

Nous rassemblons ces informations dans les figures 2.27(c) et (d). La figure 2.27(c) représente la position spectrale en fonction de l'angle d'incidence externe des pics de réflexion de Bragg polarisés sur les plans (111) polarisés s (s111, cercles noirs) et p (p111, croix rouges), ainsi que les pics de diffraction sur les plans ($\bar{1}$11) polarisés s (s$\bar{1}$11, croix bleues). La ligne noire représente la position des pics de réflexion non polarisés sur les plans (111) et ($\bar{1}$11). La figure 2.27(b) représente l'intensité des pics s111 (cercles noirs), s$\bar{1}$11 (croix bleues) et p111 (croix rouges) en fonction de l'angle d'incidence.

Sur la figure 2.27(a) les pics s111 et $s\bar{1}11$ suivent l'évolution en longueur d'onde des pics de réflexion non polarisés à $\pm 1\,\text{nm}$, ce qui nous permet d'affirmer que les effets étudiés précédemment sur les spectres non polarisés sont largement dominés par l'interaction entre l'opale et la lumière de polarisation s. Les pics p111 suivent l'évolution en longueur d'onde des pics de réflexion non polarisés à $\pm 2\,\text{nm}$ pour les angles d'incidence $\theta < 40°$ et $\theta \geq 55°$. Pour les angles tels que $40° \leq \theta \leq 54°$, les pics p111 s'éloignent des pics de réflexion non polarisés et *traversent* l'anticroisement formé par les pics s111 et $s\bar{1}11$.

La figure 2.27(d) représente l'intensité des pics s111 (cercles noirs), s$\bar{1}$11 (croix bleues) et p111 (croix rouges) en fonction de l'angle d'incidence. L'amplitude des pics s111 est relativement constante pour $20° \leq \theta \leq 40°$, et augmente progressivement pour $55° \leq \theta \leq 80°$ en raison de la plus forte réflectivité qui caractérise les grands angles. On observe une diminution de l'intensité de ces pics à partir de $\theta = 40°$ avec un minimum à $\theta = 48°$ puis un retour à l'intensité mesurée

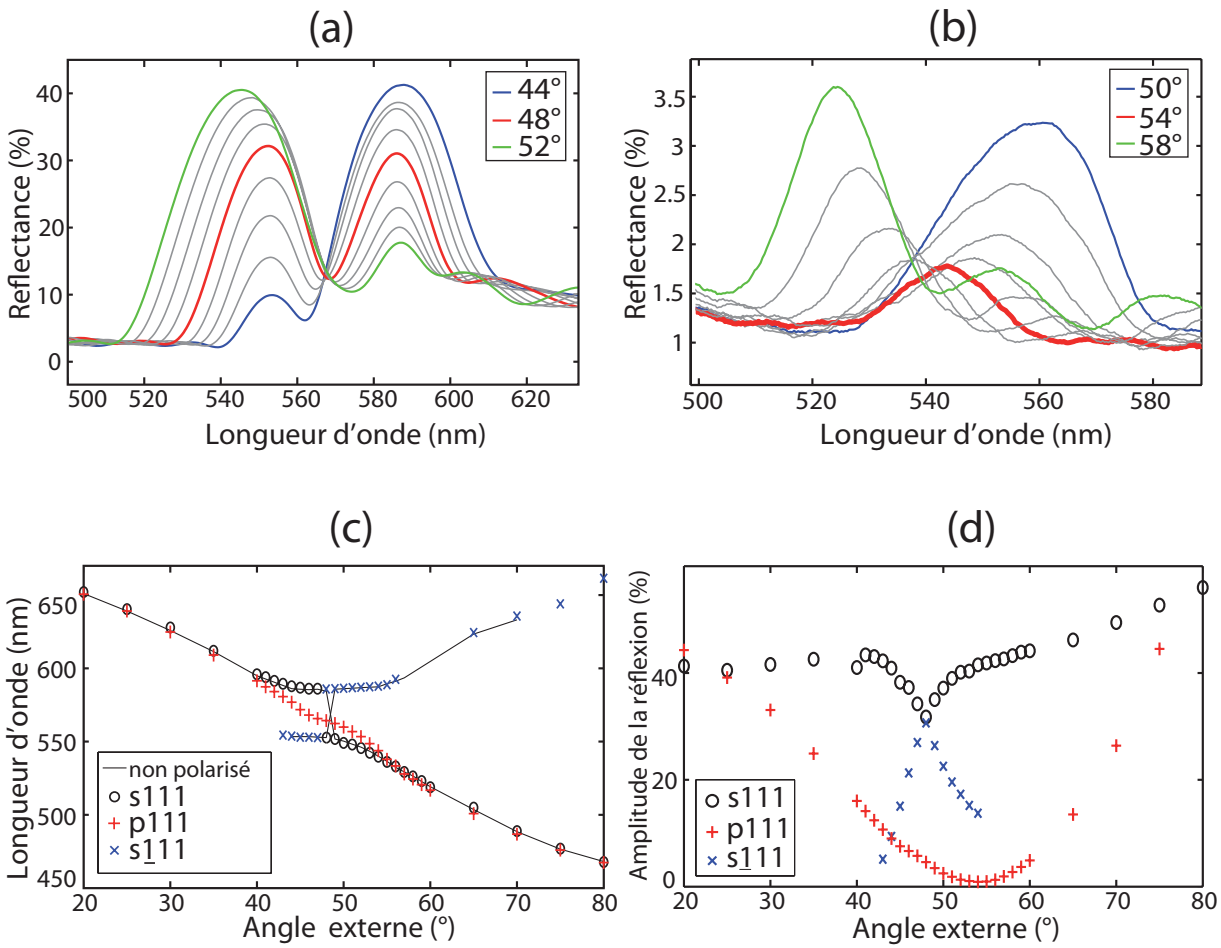

FIGURE 2.27 – (a) (a) Spectres de réflexion spéculaire de polarisation s pour des angles d'incidence θ pris de 44° à 52°, par pas de 1. La courbe rouge représente la mesure à $\theta = 48°$, pour laquelle les deux pics ont la même intensité et le plus petit écart spectral. (b) Spectres de réflexion spéculaire de polarisation p pour des angles d'incidence θ pris de 50° à 58°, par pas de 1. La courbe rouge représente la mesure à $\theta = \theta_{min} = 54°$, pour laquelle l'intensité du pic est minimale. (c) Positions en longueur d'onde et en fonction de l'angle d'incidence des pics de réflexion expérimentaux sur les plans (111) polarisés s (s111, cercles noirs) et p (p111, croix rouges) et sur les plans ($\bar{1}$11) (s$\bar{1}$11, croix bleues). La ligne noire représente la position des pics de réflexion non polarisés mesurées sur les figures 2.8 et 2.18(a). (d) Amplitude en fonction de l'angle d'incidence des pics de réflexion expérimentaux sur les plans (111) polarisés s (s111, cercles noirs) et p (p111, croix rouges) et sur les plans ($\bar{1}$11) (s$\bar{1}$11, croix bleues).

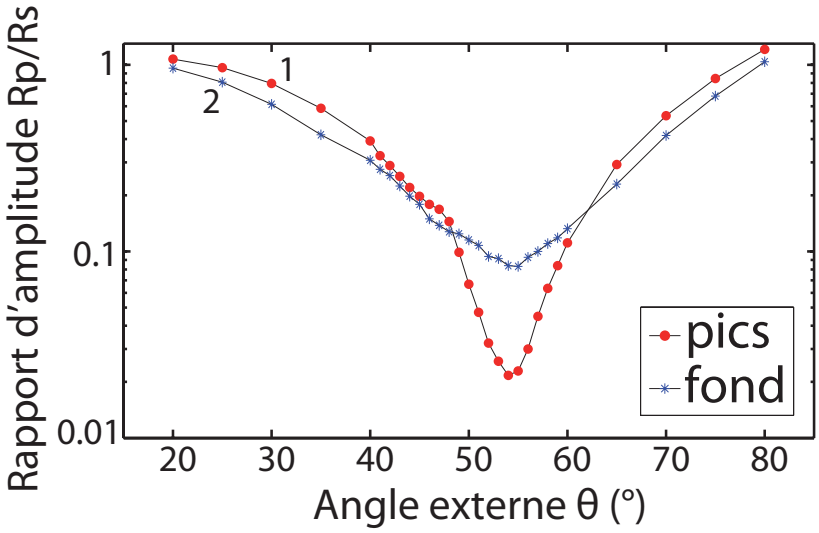

FIGURE 2.28 – Courbes de l'anisotropie (intensité de la polarisation p sur intensité de la polarisation s) des pics de réflexion sur les plans (111) (points rouges) et du fond de réflexion (points bleus) moyenné entre 700 nm et 800 nm, région hors résonance pour tous les angles d'incidence étudiés.

aux petits angles pour 48°$\leq \theta \leq$ 55°. Cette diminution puis augmentation de l'intensité des pics s111 est due à l'apparition des pics s$\bar{1}$11, dont l'évolution de l'intensité est symétrique à celles des pics s111, avec une amplitude maximale mesurée à $\theta = 48°$. La variation en fonction de l'angle d'incidence de l'amplitude des pics p111 se démarque de celles des pics s111 et s$\bar{1}$11, avec une décroissance monotone jusqu'à un minimum mesuré à $\theta_{min} = 54°$ puis une croissance monotone pour $\theta \geq 54°$.

Cette évolution de l'amplitude des pics p111 nous permet à présent d'attribuer à la composante p la variation de l'intensité des pics de réflexion observée dans les spectres de réflexion spéculaire non polarisés (figure 2.8). On rappelle que l'intensité de ces pics de réflexion non polarisés diminue de $\theta = 20°$ à $\theta = 50°$, puis augmente de $\theta = 50°$ à $\theta = 70°$. La variation de l'intensité des pics s111 étant relativement constante pour 20°$\leq \theta \leq$ 70°, cette diminution puis augmentation des pics de réflexion non polarisés est clairement due aux pics p111, dont l'évolution est semblable.

2.10.2 Angle de Brewster

Dans la section 2.5.1, nous avons ajusté l'amplitude du spectre hors résonance (entre 700 nm et 800 nm) de polarisation s et p aux coefficients de Fresnel. L'accord entre les points expérimentaux et l'évolution de ces coefficients était satisfaisant, montrant ainsi que l'opale peut être considérée comme un milieu homogène à ces longueurs d'onde. Nous avions également conclu que la courbe d'évolution en fonction de l'angle d'incidence des coefficients étant quasiment constante autour de $\theta = 55°$, estimer l'indice effectif de l'opale en déterminant l'angle de Brewster est une méthode trop imprécise.

Nous étudions à présent le mécanisme amenant à la quasi extinction du pic de polarisation p. Nous avons vu que les pics de réflexion sur l'opale étaient liés à des effets de cristal photonique

(bande interdite, interférences constructives sur des plans) tandis que l'opale aux longueurs d'onde élevées pouvait être considéré comme un matériau homogène. Nous nous attendons à observer des évolutions en fonction de l'angle d'incidence de l'amplitude des pics de réflexion et du spectre hors résonance différentes.

Nous traçons sur la figure 2.28 en fonction de l'angle d'incidence la courbe du rapport d'amplitude des pics de polarisation p et s, R_p/R_s (points rouges, courbe 1). Nous la comparons à celle du rapport d'amplitude de la partie du spectre hors résonance de polarisation p et s, moyennée entre 700 nm et 800 nm (croix bleues, courbe 2). Nous faisons deux observations :

- les deux courbes présentent un minimum à $\theta_{min} = 54°$,
- on déduit de ce minimum mesuré à $\theta_{min} = 54°$ sur la courbe 2 un indice effectif de l'opale de $n_{eff} = 1,38$, déduit de la formule de l'angle de Brewster $\theta_{BR} = \arctan n_{eff}$.

L'indice effectif de l'opale $n_{eff} = 1,38$ ainsi déterminé est alors très proche de la valeur $n_{eff} = 1,37$ déterminée par ajustement à la loi de Bragg (section 2.7.1). Avec $n_{eff} = 1,37$, on déduit un angle de Brewster $\theta_{BR} = 54°$=θ_{min} et le fait que les rapports d'intensité soient mesurés au même angle θ_{min} pour les courbes 1 et 2 suggère que la quasi extinction du pic de polarisation p est due à un effet Brewster.

C'est d'ailleurs l'argument généralement avancé dans la littérature [63,64]. Dans la référence [64], Romanov *et al.* comparent les rapports R_p/R_s sur deux opales, la première fabriquée par convection (désordre faible) et la seconde par la méthode de Langmuir-Blodgett (désordre moyen), d'indices effectifs $n_{eff} = 1,36$ et 1,25 respectivement (déterminés par ajustement à loi de Bragg). Ils réalisent également des simulations des rapports R_p/R_s sur une opale parfaite (désordre nul) par méthode des modes de Fourier [77].

Dans ces simulations, les rapports R_p/R_s du spectre hors résonance et des pics de réflexion sont minimaux à $\theta = 56°$ et $\theta = 64°$ respectivement, soit 6° d'écart. Ils définissent alors le premier angle comme l'angle de Brewster et le second comme l'angle de diffraction critique pour lequel la suppression du pic de réflexion polarisé p s'explique par un modèle diffractif (nous en reparlerons dans la section 2.10.3).

Expérimentalement, les rapports R_p/R_s de l'amplitude du spectre hors résonance et des pics de réflexion sur les deux opales sont mesurés à des angles comparables avec un écart de deux degrés au plus pour l'opale fabriquée par convection, et la valeur de ces angles ($\approx 54°$ pour l'opale fabriquée par convection et $\approx 51°$ pour l'opale Langmuir-Blodgett) correspond à la valeur de l'angle de Brewster calculée avec les indices effectifs mentionnés plus haut. Ils en déduisent que l'effet Brewster est dominant, et que cette dominance est due au désordre présent dans les opales, qui provoque des processus de diffusion, eux-mêmes responsables d'effets de dépolarisation.

Cependant, la valeur de l'indice effectif de l'opale $n_{eff} = 1,37$ est celle que nous avions écartée dans la section 2.7.3 malgré l'excellent accord avec l'ajustement à la loi de Bragg. Nous avions alors opté pour une méthode de caractérisation différente (2.8.2), qui nous a permis de déterminer $n_{eff} = 1,29$. L'angle de Brewster obtenu avec cette valeur de n_{eff} est $\theta_{BR} = 52°$. Nous ne sommes pas très éloignés de la valeur expérimentale $\theta_{min} = 54°$, mais l'indice déterminé par ajustement à la loi de Bragg donne la valeur expérimentale exacte de θ_{min}. Si nous sommes bien en présence d'un effet Brewster, la pertinence de notre méthode de caractérisation de

l'indice effectif de l'opale par centrage de l'anticroisement est remise en cause (légèrement). Il s'agit alors de définir quel est le mécanisme responsable de la quasi extinction du pic de réflexion de polarisation p.

2.10.3 Angle de diffraction critique

Angle de diffraction critique dans les opales à faible contraste d'indice

La question de la suppression du pic de réflexion polarisé p a été résolue dans le cas des opales à faible contraste d'indice ($\Delta n << 1$) [68, 76], obtenues en immergeant l'opale dans un liquide d'indice proche de celui des billes. Le modèle adopté est celui des plans réfléchissants d'épaisseur nulle dans un milieu d'indice effectif n_{eff} identique à celui utilisé dans la section 2.7.1. Dans ce modèle, il existe un angle pour lequel l'onde polarisée p n'est pas réfléchie, même si sa longueur d'onde satisfait aux conditions d'interférences constructives. Le mécanisme de suppression du pic de réflexion polarisé p à cet angle est différent de celui décrit par l'effet Brewster, et de fait cet angle est appelé « angle de diffraction critique » θ_c . Les auteurs de la référence [68], après une série de calculs portant sur la largeur des bandes interdites de polarisation p, parviennent à définir une formule leur permettant de calculer l'angle pour lequel le pic de polarisation p disparaît. Ils interprètent alors cette formule en présentant un schéma illustrant le mécanisme responsable de ce phénomène. Nous présentons ici ce schéma et renvoyons à la référence [68] pour la démonstration complète. Ce schéma du mécanisme de la diffraction critique est présenté sur la figure 2.29(b), et est comparé au schéma du mécanisme de l'effet Brewster sur la figure 2.29(a). Nous expliquons rapidement les mécanismes en question pour en arriver à la formule qui a été proposée.

On considère une onde incidente sur une interface séparant deux milieux homogènes d'indices n_0 et n. Cette onde est polarisée p, c'est-à-dire avec le champ électrique contenu dans le plan d'incidence. L'angle de Brewster θ_{BR} (figure 2.29(a)) est atteint lorsque l'angle entre le vecteur d'onde réfracté $\boldsymbol{K}$ et la direction spéculaire vaut 90°. Le champ électrique de l'onde polarisée p est alors dirigé suivant la direction spéculaire et l'onde ne peut pas être réfléchie.

Le mécanisme diffère pour l'angle de diffraction critique. On note qu'afin de décrire plus précisément l'indice de l'opale, les auteurs de la référence [68] calculent la modulation de l'indice effectif suivant l'axe **z** (axe orthogonal à la surface de l'échantillon), qui est périodique. Il existe alors un vecteur de maille réciproque $\boldsymbol{G}$ défini par la périodicité de l'indice. Ils déduisent ensuite de la modulation de l'indice un indice effectif de la structure, ce qui revient finalement à considérer l'opale comme un milieu homogène d'indice effectif n_{eff} contenant des plans réfléchissants régulièrement espacés. Les auteurs expliquent alors le mécanisme de l'angle de diffraction critique par le schéma présenté sur la figure 2.29(b).

On considère toujours une onde polarisée p incidente sur une interface séparant deux milieux d'indices n_0 et n_{eff}. L'angle de diffraction critique est atteint lorsque l'angle entre le vecteur d'onde réfracté $\boldsymbol{k}$ et le vecteur $\boldsymbol{G}$ vaut 45°, et l'angle entre le vecteur d'onde diffracté $\boldsymbol{k} - \boldsymbol{G}$ et $\boldsymbol{K}$ vaut 90°. Dans ce cas, l'onde diffractée ne peut pas se propager dans la direction définie par le vecteur d'onde $\boldsymbol{k} - \boldsymbol{G}$, qui est aussi la direction dans laquelle oscille le champ électrique. L'onde d'incidence θ_c et de vecteur $\boldsymbol{k}$ satisfaisant aux conditions prédédemment décrites n'est

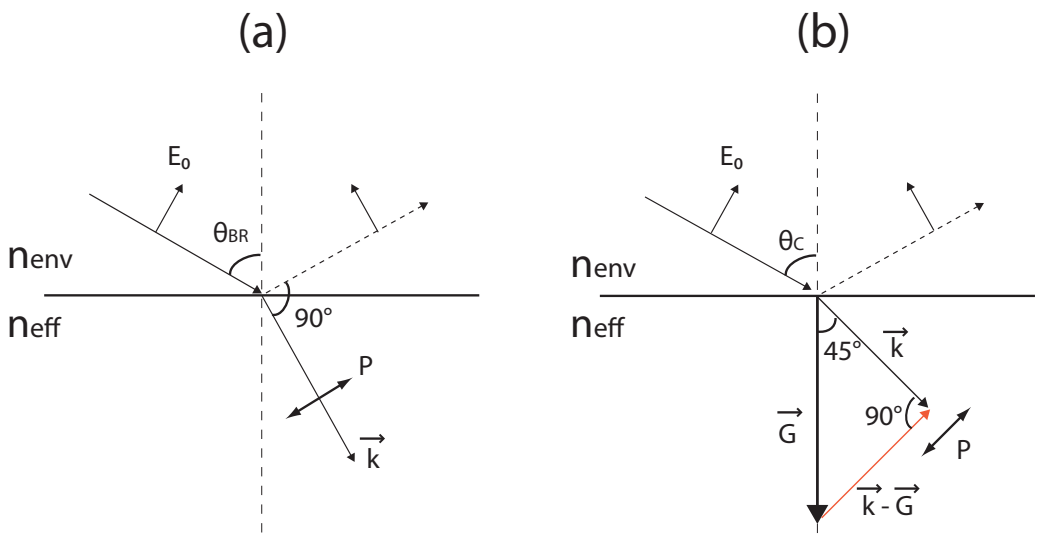

Figure 2.29 – (a) Schéma expliquant le mécanisme de l'effet Brewster. L'onde polarisée p ne peut pas être réfléchie dans la direction spéculaire lorsque les directions des vecteurs réfracté et spéculaire sont orthogonales.(b) Schéma expliquant le mécanisme de l'angle critique de diffraction proposé par Bazhenova *et al.* dans la référence [68]. L'onde polarisée p ne peut pas être diffractée lorsque $\overrightarrow{G} \cdot (\boldsymbol{k} - \boldsymbol{G}) = 0$, avec $\overrightarrow{G}$ vecteur de la maille réciproque.

alors pas réfléchie.

En utilisant la loi de Snell-Descartes, la formulation de ce mécanisme est immédiate. On a $n_0 \sin\theta_c = n_{eff} \sin\pi/4$, soit encore :

$$\theta_c = \arcsin \frac{n_{eff}}{\sqrt{2}n_0} \tag{2.14}$$

La relation (2.14) est donc effectivement limitée aux opales à faible contraste d'indice, puisqu'elle impose $n_{eff} < \sqrt{2}n_0$. Dans cette étude, le contraste d'indice présenté par l'opale est de l'ordre de $n_{eff}/n_0 \approx 1,1$. les auteurs mesurent l'annulation de la réflexion polarisée p à $\theta = 50°$. La relation 2.14 donne $\theta_c = 53°$. La précision sur n_{eff} n'étant pas donnée, nous ne pouvons pas évaluer si cette erreur de 3° est significative.

Notre opale présente un contraste d'indice plus élevé (rapport d'indice $n_{eff}/n_0 = 1,29$) que celle décrite à l'instant mais remplit la condition imposée par la relation (2.14), qui donne $\theta_c = 66°$ soit un écart de 12° avec l'angle expérimental pour lequel est mesuré la réflexion polarisée p minimale.

Angle de diffraction critique dans un miroir de Bragg

Le modèle décrit dans la référence [68] n'est donc pas adapté à notre opale. Néanmoins, l'idée d'aborder la question de la suppression de la polarisation p par un modèle diffractif nous semble intéressante, et il est possible que le fait de considérer l'opale comme un milieu

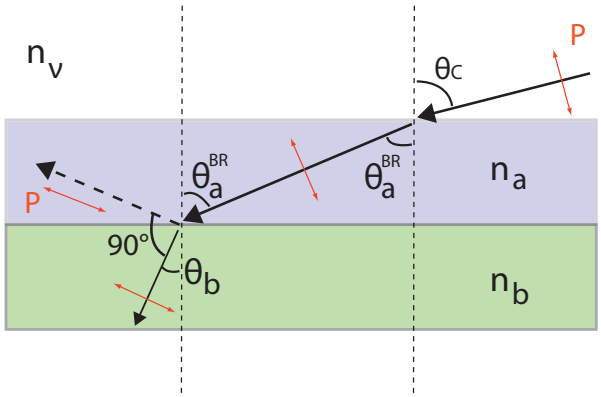

FIGURE 2.30 – Géométrie du mécanisme de l'angle critique pour un miroir de Bragg formé de couches **a** et **b** alternées d'indices n_a et n_b respectivement, l'indice du milieu environnant étant n_ν. L'angle critique est atteint lorsque l'angle réfracté dans le milieu **a** atteint lui-même l'angle de Brewster à l'interface **a**/**b**. L'angle critique est alors décrit par la relation 2.15.

d'indice effectif soit une hypothèse erronée. Nous proposons alors de modéliser l'opale comme un miroir de Bragg, c'est-à-dire une succession de couches A et B alternées d'épaisseurs non nulles et d'indices n_a et n_b tels que $n_a \neq n_b$ (voir figure 2.30). Pour une telle structure, il existe également un angle de diffraction critique pour lequel la polarisation p s'annule. La figure 2.30 représente un schéma décrivant la géométrie du phénomène.

On considère une onde polarisée p provenant d'un milieu homogène d'indice n_0 et d'angle incident θ par rapport à la normale au miroir de Bragg. L'onde est réfractée dans la couche A avec un angle θ_a et on a d'après la loi de Snell-Descarte $n_0 \sin\theta = n_a \sin\theta_a$. Cet angle θ_a est aussi l'angle d'incidence sur la couche B et l'onde est réfractée dans la couche B avec un angle θ_b donné par $n_a \sin\theta_a = n_b \sin\theta_b$. L'angle de diffraction critique $\theta = \theta_c$ est l'angle pour lequel la condition de Brewster à l'interface **a**/**b** est remplie, c'est-à-dire lorsque l'angle θ_a est défini par la relation $\theta_a = \theta_a^{BR} = \arctan(n_b/n_a)$. En exprimant l'angle d'incidence $\theta = \theta_c$ sur le miroir de Bragg en fonction de θ_a^{BR}, on a :

$$\theta_c = \arcsin\left(\frac{n_a}{n_0}\sin\left(\arctan\frac{n_b}{n_a}\right)\right)$$

ce qui avec les identités trigonométriques $\sin\arctan x = x/\sqrt{1+x^2}$ et $\arcsin x = \arctan(x/\sqrt{1-x^2})$ permet d'écrire [78] :

$$\theta_c = \arctan\frac{n_a\, n_b}{\sqrt{(n_a^2+n_b^2)-(n_a n_b)^2}} \tag{2.15}$$

où l'on a prit $n_0 = 1$ l'indice de l'air. Il nous faut alors définir l'indice des couches A et B. Nous proposons pour cela un modèle prenant en compte la modulation de l'indice de l'opale suivant l'axe z (axe orthogonale à la surface de l'opale).

Modulation de l'indice

Afin de réduire l'opale à un système 1D, nous moyennons le facteur de remplissage suivant les directions x et y, l'hypothèse étant que l'indice ne varie que suivant z. Comme nous l'avons déjà vu, l'empilement des billes dans une structure cfc compacte et dans la direction z est du type ABCABC..., avec un décalage d'un plan à l'autre (voir figure 2.31(a)). Cependant, dans chacun de ces plans, les billes sont organisées en un réseau triangulaire identique, que le plan soit de type A, B ou C. Le facteur de remplissage à une côte z donnée est donc le même quelle que soit la couche (A, B ou C) considérée. L'arrangement vertical des billes, une fois la moyenne suivant les directions x et y effectuée, correspond alors à un empilement de type AAA (par exemple), les billes étant disposées « l'une dans l'autre »(voir figure 2.31(b)).

Le calcul de la modulation de l'indice revient donc à calculer le facteur de remplissage des billes dans cette configuration, c'est-à-dire la fraction du plan de vecteur non nul $\hat{\boldsymbol{z}}$ qui coupe les sphères. La contribution d'un plan de billes centrées dans le plan $z = 0$ est, pour une section en un plan de cote z :

$$S_1(z) = \frac{2}{\sqrt{3}\,D^2}\frac{\pi(D^2 - z^2)}{4}$$

où D est le diamètre des sphères et $(\sqrt{3}/2)D^2$ l'aire d'une maille du réseau triangulaire. Dans la configuration décrite ci-dessus, on distingue sur une période, qui on le rappelle est définie par la distance $d_{111} = \sqrt{2/3}D$ entre les centres de deux billes, c'est-à-dire un intervalle $0 \leq z \leq \sqrt{2/3}D$ quatre hauteurs particulières (voir figure 2.31) : la hauteur $z_1 = 0$ du plan coupant la première bille en son centre, la hauteur à partir de laquelle la première bille se confond avec la seconde bille $z_2 = (\sqrt{2/3} - 1/2)D$, la hauteur à partir de laquelle les deux billes ne se confondent plus $z_3 = D/2$, et la hauteur $z_4 = \sqrt{2/3}D$ du plan coupant la seconde bille en son centre. La modulation du facteur de remplissage est alors donnée par les relations [79] :

$$\begin{aligned}
\text{de } 0 \text{ à } z_2 : &\quad S(z) = S_1(z) = \frac{\pi}{8\sqrt{3}}\Big(1 - \Big(\frac{z}{D}\Big)^2\Big) \\
\text{de } z_2 \text{ à } z_3 : &\quad S(z) = S_1(z) + S_1(z - d_{111}) = \frac{\pi}{8}\Big(\frac{4\sqrt{2}}{3}\frac{z}{D} - \frac{2}{3\sqrt{3}} - \frac{2}{\sqrt{3}}\Big(\frac{z}{D}\Big)^2\Big) \\
\text{de } z_3 \text{ à } z_4 : &\quad S(z) = S_1(z - d_{111}) = \frac{\pi}{8}\Big(\frac{4\sqrt{2}}{3}\frac{z}{D} - \frac{5}{3\sqrt{3}} - \frac{1}{\sqrt{3}}\Big(\frac{z}{D}\Big)^2\Big)
\end{aligned}$$

On obtient alors la modulation de l'indice effectif suivant z avec la relation :

$$n_{eff}^2(z) = n_{SiO_2}^2\, S(z) + (1 - S(z))n_0^2 \tag{2.16}$$

où n_0 est l'indice du milieu hôte ($n_0 = n_{air}$ ici). En prenant la valeur $n_{SiO_2} = 1,38$ (obtenue avec $n_{eff} = 1,29$), on trace $n_{eff}(z)$ sur la figure 2.31(c). Dans ce modèle la valeur de l'indice

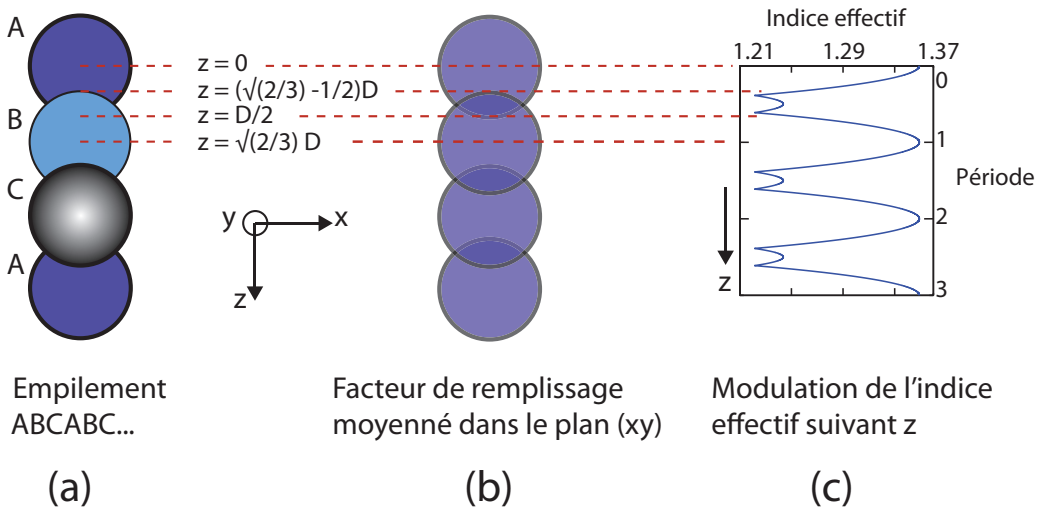

FIGURE 2.31 – Calcul de la modulation du facteur de remplissage suivant l'axe z, en moyennant le facteur de remplissage dans les directions x et y, c'est-à-dire dans les plans parallèles aux plans (111). (a) Un empilement de type ABCABC... typique d'une structure cfc compacte. (b) L'équivalent d'une structure ABCABC... une fois le facteur de remplissage moyenné dans les plans parallèles aux plans (111). (c) La courbe de la modulation de l'indice effectif suivant z, calculée avec la relation 2.16.

effectif maximum est $n_{eff}(z = 0) = 1,35$ et décroît en suivant le profil de la bille jusqu'à un minimum $n_{eff}(z_2) = 1,22$. Dans la région où les deux billes se confondent l'indice effectif augmente légèrement jusqu'à $n_{eff}((z_2 + z_3)/2) = 1,24$. La modulation sur la demi-période restante est symétrique à celle que nous venons de décrire.

La modulation de l'indice effectif suivant l'axe **z** déterminée, nous pouvons à présent modéliser l'opale par un miroir de Bragg. Pour cela, nous attribuons aux couches A et B les épaisseurs arbitraires $a = 2z_2 = 2D\,(\sqrt{2/3} - 1/2)$ et $b = z_3 - z_2 = D(1 - \sqrt{2/3})$, qui correspondent aux valeurs de z pour lesquelles les billes ne se confondent pas et se confondent respectivement (voir figure 2.31(b)). En prenant $D = 329\,\text{nm}$, on a $a = 208\,\text{nm}$ et $b = 60\,\text{nm}$. La moyenne de $n_{eff}(z)$ calculée pour ces épaisseurs donne $n_a = 1,3$ et $n_b = 1,23$ (l'indice effectif total reste égal à $n_{eff} = 1,29$). La relation 2.15 donne alors $\theta_c = 63°$, valeur éloignée de près de 10° par rapport à l'angle expérimental pour lequel l'anisotropie maximale est mesurée ($\theta = 54°$)

Nous traçons sur la figure 2.32 le rapport R_p/R_s de l'amplitude des pics de réflexion de polarisation s et p pour un tel miroir de Bragg (triangles) et pour une structure présentant la modulation d'indice effectif présentée sur la figure 2.31(c) (carrés) en fonction de l'angle d'incidence θ. Les pics de réflexion polarisés s et p sur lesquels nous avons mesurés les intensités ayant servies à tracer ces courbes ont été simulées par le logiciel FilmWizard. La courbe du rapport R_p/R_s expérimentale est également représentée (points rouges).

Les deux modèles présentent un minimum du rapport R_p/R_s marqué, à $\theta = 63°$, en accord avec la relation 2.15 pour le miroir de Bragg. Le choix d'indices différents pour les couches A et B (de façon à conserver un indice effectif total $n_{eff} = 1,29$) donne le même angle. Rappelons que ce minimum est mesuré à $\theta_{min} = 54°$ sur l'opale. Nous constatons donc que malgré une

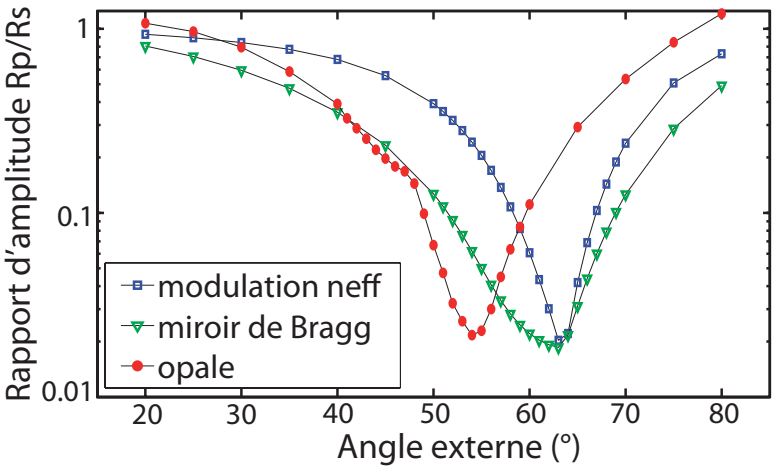

FIGURE 2.32 – Rapport d'amplitude des pics de réflexion sur un miroir de Bragg (triangles) et une structure avec modulation d'indice (carrés) en fonction de l'angle d'incidence θ. La modulation de l'indice effectif est calculée avec la relation (2.16) en prenant $n = n_{SiO_2} = 1,38$ (valeur obtenue avec $n_{eff} = 1,29$). Les épaisseurs et indices des couches **a** et **b** du miroir de Bragg sont déterminées à partir de la courbe de modulation de l'indice et sont telles que $a = 208\,nm$ et $b = 60\,\text{nm}$, $n_a = 1,3$ et $n_b = 1,23$. La courbe d'anisotropie des pics de réflexion sur l'opale est représentée par des points rouges.

description de l'indice a priori plus précise, ces deux modèles ne parviennent pas à reproduire la suppression de la réflexion polarisée p sur notre opale au bon angle.

2.10.4 Effet Brewster et diagrammes de bandes

Nous cherchons à présent à retrouver l'effet Brewster dans le diagramme de bandes de l'opale. Nous cherchons donc un angle pour lequel les bandes polarisées p du diagramme de bandes *se rejoignent*, ce qui correspondrait à une fermeture de la bande interdite (et donc une transmission, ie un effet Brewster).

Nous traçons alors afin de bien visualiser la bande interdite des diagrammes de bandes du type de ceux décrits dans la section 2.8.1. L'annulation de la réflexion polarisée p est observée expérimentalement pour les pics de diffraction sur les plans (111) de l'opale et nous traçons les bandes interdites formées par ces plans. Les angles $\theta_{int} = (\overrightarrow{\Gamma K}, \overrightarrow{\Gamma K}_{111})$ sont choisis tels que $\theta_{int} > \theta_K = 35,3°$, l'angle expérimental $\theta_{min} = 54°$ étant supérieur à l'angle correspondant au centre de l'anticroisement (ie point K). Les figures 2.33(a), (b) et (c) représentent les bandes interdites formées par les plans (111) aux angles $\theta_{int} = 36°$, 38° et 40° respectivement, et pour lesquels $n_{SiO_2} = 1,38$ (ie $n_{eff} = 1.29$). Les figures 2.33(d), (e) et (f) représentent les bandes interdites formées par les plans (111) aux angles $\theta_{int} = 36°$, 38° et 39° respectivement, et pour lesquels $n_{SiO_2} = 1,48$ (ie $n_{eff} = 1.37$). Les bandes de polarisation p sont tracées en pointillés, les bandes de polarisation s en traits pleins.

Les bandes qui nous intéressent ici sont les bandes de polarisation p (en pointillés). Pour tous les diagrammes de bandes de la figure 2.33, la bande de polarisation p de basse énergie

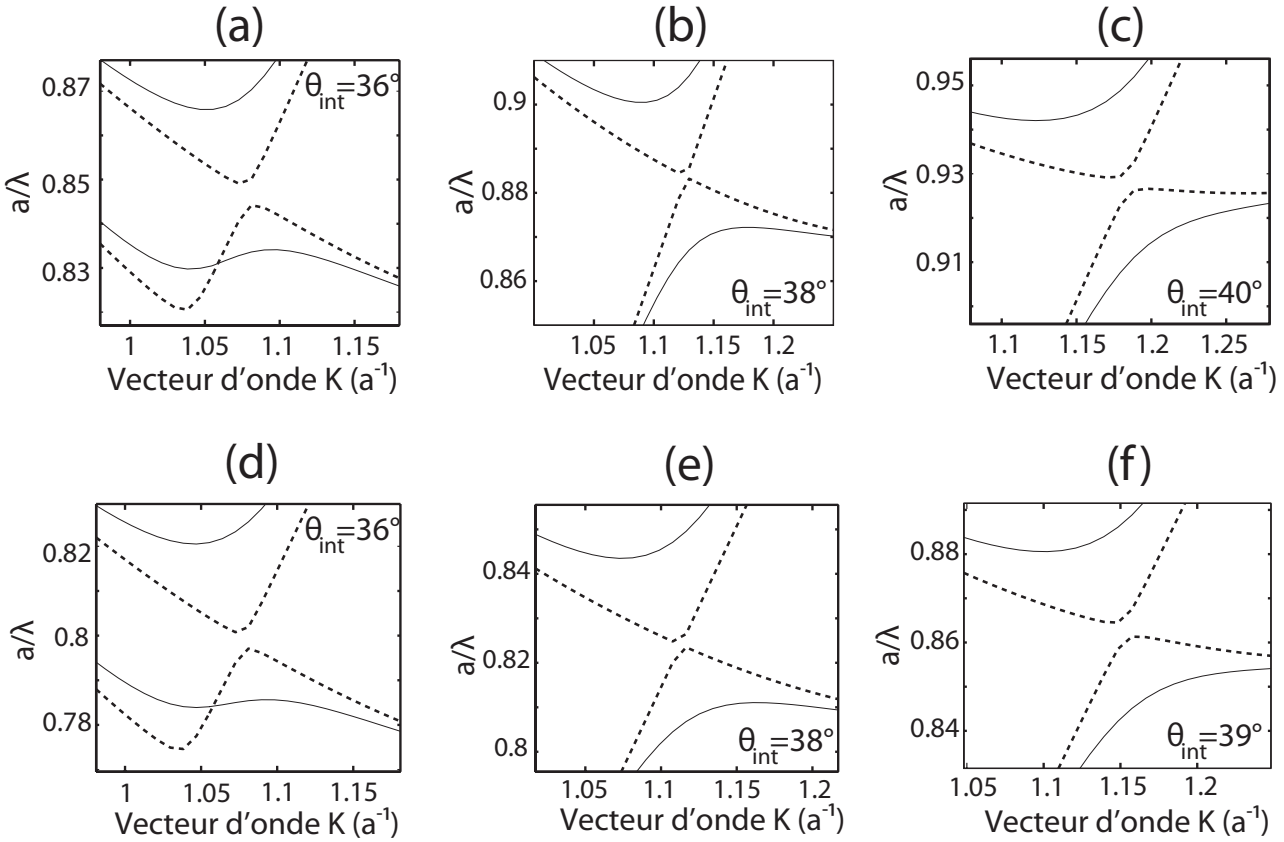

FIGURE 2.33 – Bandes interdites formées par les plans (111) à différents angles $\theta_{int} > \theta_K$. Les bandes polarisées p sont en pointillés et les bandes polarisées s en traits pleins. (a) (b) et (c) : Diagrammes de bandes calculés avec $n_{SiO_2} = 1,38$ (valeur pour $n_{eff} = 1,29$) pour les angles $\theta_{int} = 36°$, $38°$ et $40°$ respectivement. La bande interdite polarisée p la plus étroite est obtenue pour $\theta_{int} = 38°$. (d) (e) et (f) : Diagrammes de bandes calculés avec $n_{SiO_2} = 1,48$ (valeur pour $n_{eff} = 1,37$) pour les angles $\theta_{int} = 36°$, $38°$ et $39°$ respectivement. La bande interdite polarisée p la plus étroite est obtenue pour $\theta_{int} = 38°$.

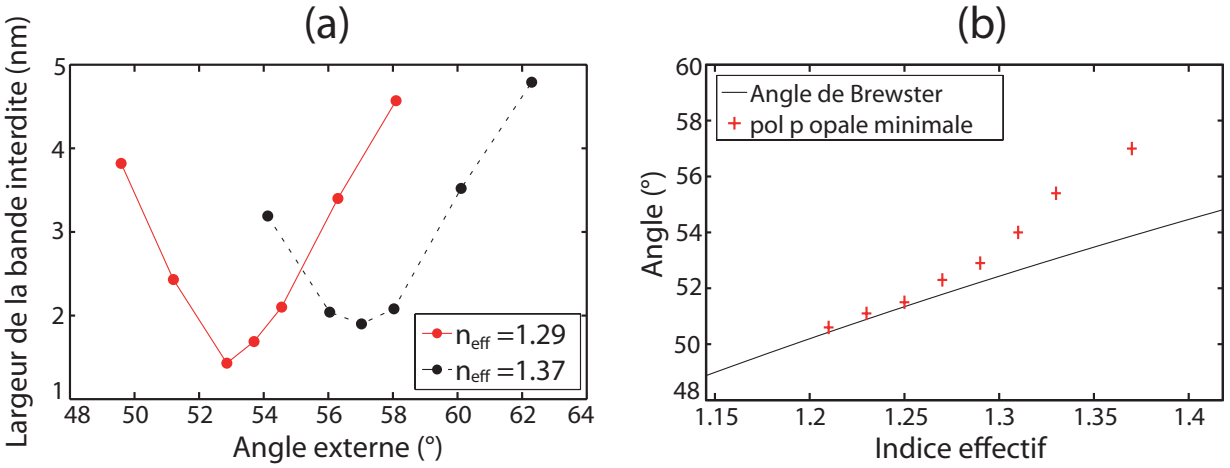

FIGURE 2.34 – (a) Largeurs des bandes interdites (en nanomètres) de polarisation p centrées en fonction de l'angle d'incidence externe θ, pour $n_{eff} = 1,29$ (points rouges) et $n_{eff} = 1,37$ (points noirs). Pour $n_{eff} = 1,29$, la bande interdite la plus étroite est calculée à $\theta = 53°$. Pour $n_{eff} = 1,37$, elle est calculée à $\theta = 57°$. (b) Comparaison des angles de Brewster (ligne noire) et des angles pour lesquels la bande interdite de polarisation p de l'opale est la plus étroite (croix rouges) en fonction de l'indice effectif du milieu considéré.

présente un maximum et celle de haute énergie un minimum. L'écart en énergie normalisée entre ces deux extrema correspond à la largeur de la bande interdite. Tous ces écarts sont très faibles, de l'ordre de 10^{-3} en unités de a/λ, soit quelques nanomètres, comparés à la largeur des bandes interdites pour la polarisation s de l'ordre de 10^{-2} en unités de a/λ, soit quelques dizaines de nanomètres. On observe cependant des différences. La largeur des bandes interdites pour la polarisation p formées pour $n_{SiO_2} = 1,38$ (ie $n_{eff} = 1,29$) aux angles $\theta_{int} = 36°$, $38°$ et $40°$ (figures 2.33(a), (b) et (c) respectivement) est $\Delta E = 6,0.10^{-3}$, $2,5.10^{-3}$ et $6,5.10^{-3}$ en unités de a/λ, soit en longueur d'onde $\Delta\lambda \approx 4$ nm, 1,5 nm et 3,5 nm respectivement (calculées avec $D = 329$ nm). La bande interdite la plus étroite est donc celle calculée à $\theta_{int} = 38°$ pour les diagrammes de bandes tracés avec un indice des billes de silice de $n_{SiO_2} = 1,38$ (ie $n_{eff} = 1,29$). De la même façon, la bande interdite la plus étroite pour les diagrammes de bandes tracés avec $n_{SiO_2} = 1,48$ (ie $n_{eff} = 1,37$) est calculée à $\theta_{int} = 38°$ et sa largeur vaut $\Delta\lambda \approx 2$ nm (calculée avec $D = 301$ nm). On n'observe donc pas de fermeture complète de la bande interdite. Cependant, on n'observe pas non plus expérimentalement d'annulation totale de la réflexion polarisée p sur l'opale et le fait qu'il existe toujours dans le diagramme de bande une bande interdite polarisée p, même très étroite, va dans le sens de l'expérience.

Nous avons donc montré que théoriquement il existe bien un angle θ_{int} pour lequel la bande interdite polarisée p est très étroite. Nous avons aussi montré que pour les autres angles la bande interdite polarisée p est plus large. Cela signifie que plus on s'approche de cet angle, plus la bande interdite polarisée p s'affine et l'intensité de la réflexion polarisée p diminue. Nous attribuons donc cet angle à l'angle expérimental θ_{min} pour lequel l'intensité du pic de polarisation p est minimale. On rappelle que cet angle expérimental vaut $\theta_{min} = 54°$. Nous traçons alors sur la figure 2.34(a) la largeur en nanomètres des bandes interdites pour la polarisation p en fonction de l'angle d'incidence externe θ, pour $n_{eff} = 1,29$ (points rouges) et 1,37 (points noirs) respectivement.

Comme décrit précédemment, on observe la largeur de la bande interdite diminuer jusqu'à un angle θ_{min}, puis augmenter pour des angles θ_{int} plus élevés. Exprimé en angle externe, on a pour $n_{eff} = 1,29$ la largeur de bande interdite minimale à $\theta = 53°$. Pour $n_{eff} = 1,37$, la largeur minimale est calculée pour $\theta = 57°$.

Nous déduisons de ces calculs le résultat suivant : *la suppression du pic de réflexion de polarisation p sur l'opale n'est pas un effet Brewster*, du moins dans le sens classique du terme. Pour $n_{eff} = 1,29$ et 1,37, on a $\theta_{BR} = 52°$ et $54°$ respectivement, et les bandes interdites les plus étroites sont calculées à $\theta = 53°$ et $57°$ respectivement. Ce résultat souligne le fait que l'opale n'est pas un milieu homogène, mais bien un cristal photonique avec une structuration complexe de l'indice.

Nous concluons ce chapitre par le calcul pour différentes valeur de n_{eff}, des angles pour lesquels la largeur de la bande interdite pour la polarisation p est minimale. Ces calculs sont présentés sur la figure 2.34(b) (croix rouges) et sont comparés à l'évolution de l'angle de Brewster théorique (courbe noire) en fonction de l'indice du milieu semi-infini considéré. Pour $n_{eff} < 1,25$, les deux angles sont équivalents, et l'opale peut-être considérée comme un milieu d'indice homogène. Pour $1,25 < n_{eff} < 1,3$, l'angle pour lequel la largeur de la bande interdite est minimale commence à s'écarter de l'angle de Brewster, avec un écart de 1° pour $n_{eff} = 1,29$ l'indice effectif de notre opale. Pour $n_{eff} > 1,3$, l'écart entre les deux angles augmente. Par exemple pour $n_{eff} = 1,37$, c'est-à-dire un indice des billes de $n_{SiO_2} = 1,48$ soit la limite supérieure de l'indice que l'on peut atteindre avec la silice, l'écart entre les deux angles est de 3°. La modulation de l'indice dans la structure de l'opale devient importante et l'opale peut de moins en moins être considérée comme un milieu homogène.

2.11 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié les propriétés de réflexion d'une opale. En premier lieu, nous avons effectué une caractérisation par goniométrie de la lumière réfléchie par l'opale. Cette expérience a permis de mettre en évidence deux propriétés :

1. L'observation de deux pics de réflexion spéculaire, dont les évolutions avec l'angle d'incidence diffèrent : un pic de réflexion principal dont la longueur d'onde diminue avec l'angle d'incidence, et un pic de réflexion secondaire, apparaissant autour de $\theta = 50°$ et dont la longueur d'onde augmente avec l'angle d'incidence.
2. La quasi suppression de l'intensité du pic de réflexion principale de polarisation p à un angle proche de l'angle de Brewster.

Chacune de ces propriétés a auparavant été rapportée dans la littérature, et diverses interprétations ont été proposées. Nous avons confronté ces différentes interprétations à nos mesures, montré leurs limites et proposé, par une étude approfondie des diagrammes de bandes de l'opale, de nouveaux mécanismes permettant d'expliquer les propriétés observées.

Nous avons mis en évidence, par l'étude de l'évolution de la largeur des bandes interdites pour la polarisation p, d'un angle pour lequel cette largeur est minimale. Cet angle, très proche de l'angle expérimental, est aussi différent de l'angle de Brewster calculé pour un milieu d'indice

homogène, interprétation souvent proposée dans la littérature. Cette seconde étude démontre ainsi qu'une opale, cristal photonique présentant une structuration de l'indice complexe, ne peut être considérée comme un milieu homogène.

Afin d'expliquer l'évolution avec l'angle d'incidence de la longueur d'onde des pics de réflexion, nous avons comparé l'évolution des conditions d'interférences constructives sur différents plans de la structure cubique à faces centrées de l'opale, décrites par la loi de Bragg, avec celle des bandes interdites formées dans l'opale. Cela nous a permis de confirmer que ces deux approches sont qualitativement identiques. Nous avons déterminé par ajustement par la loi de Bragg, méthode généralement utilisée dans la littérature, des valeurs de l'indice effectif et du diamètre des billes, et constaté que ces valeurs étaient erronées, car très éloignées de celles obtenues par ellipsométrie et mesures AFM.

Nous avons alors proposé une méthode de caractérisation alternative de l'indice effectif de l'opale, fondée sur l'étude de l'anticroisement des bandes interdites et le centrage du point K de la zone de Brillouin sur cet anticroisement. Les valeurs de l'indice effectif et du diamètre des billes, alors en accord avec les caractérisations effectuées par ellipsométrie et mesures AFM, nous ont permis d'expliquer un phénomène jusqu'alors négligé dans la littérature : l'observation du pic de réflexion secondaire aux angles de détection spéculaires. Nous avons démontré que les réflexions successives sur les plans $(\bar{1}11)$ et (200) de l'opale permet d'expliquer l'angle et la longueur d'onde mesurés pour l'angle d'incidence θ_K. Cette démonstration constitue la base d'une étude actuellement menée dans l'équipe pour expliquer l'observation de ce pic aux angles de détection spéculaires différents de θ_K. Des mesures de la lumière transmise à travers l'opale sont également prévues, afin d'apporter un point de vue différent sur les bandes interdites de l'opale.

Chapitre 3

Fabrication et simulations numériques d'une cavité de cristal photonique planaire

L'inclusion d'un défaut dans le réseau d'un cristal photonique planaire, et donc la création d'une cavité, brise la symétrie du réseau, offrant alors la possibilité à des états dont la fréquence est située dans la bande interdite du cristal photonique d'exister dans la cavité. Néanmoins, ces états restent dans l'impossibilité de se propager à travers le réseau entourant la cavité, qui conserve sa bande interdite intacte. Ils sont alors confinés au sein de la cavité, et à certaines fréquences apparaissent des modes résonants [80–82].

Ce mécanisme permet de confiner la lumière à la fréquence du mode résonant de la cavité, dans des volumes faibles et avec des facteurs de qualité élevés. Dans cette thèse, nous nous intéressons aux cavités de type L3 sur lesquelles une recherche intense est effectuée depuis une dizaine d'années, en raison des facteurs de qualité extrêmement élevés atteint dans l'infrarouge [83, 84]. Ces recherches ont ainsi permis une avancée considérable vers l'utilisation de cavités pour la réalisation de laser à bas seuil [85] et la cryptographie quantique [85, 86].

Les cavités présentant des modes résonants dans le visible ont reçu moins d'attention. Leur fabrication nécessite des techniques de lithographie plus précises, l'échelle du réseau à graver devant être plus petite pour confiner la lumière à des longueurs d'onde plus basses. Il est de plus nécessaire d'utiliser des matériaux peu absorbants dans le visible. L'indice de ces matériaux étant plus faible, la cavité est moins confinante [87–89].

Dans ce chapitre, nous décrivons le procédé de fabrication de ces cavités, dont les paramètres sont choisis de façon à présenter une bande interdite dans le domaine visible et nous réalisons une caractérisation structurelle par AFM. Nous expliquons ensuite comment nous simulons par une méthode de FDTD (« Finite-Difference-Time-Domain ») les modes résonants de ces cavités, simulations que nous comparerons à une caractérisation optique expérimentale dans le chapitre suivant.

3.1 Echantillons

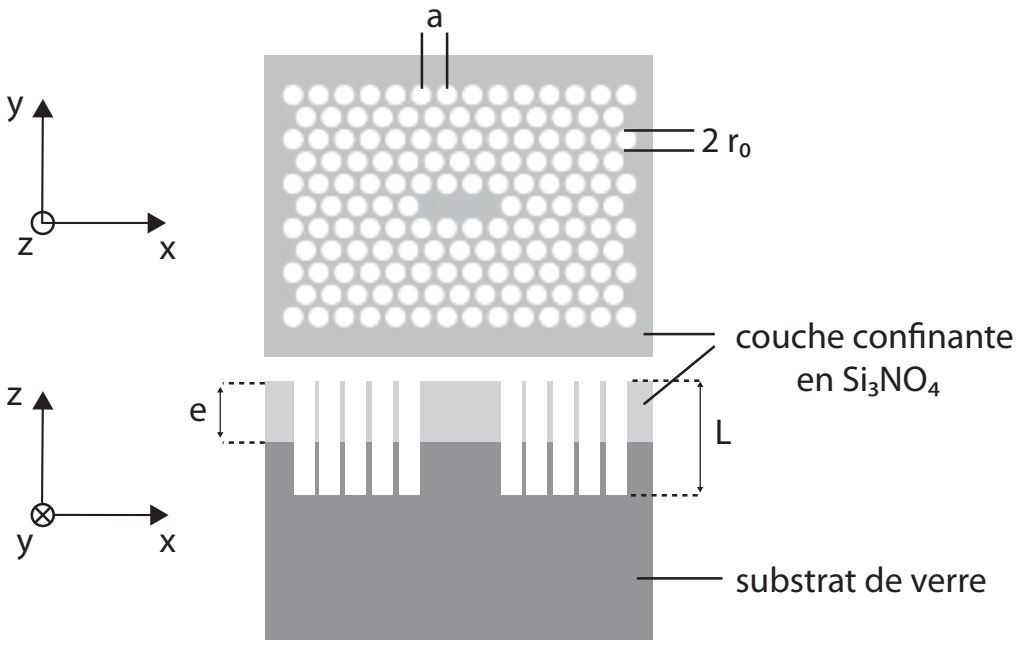

Figure 3.1 – Schémas d'une cavité L3, coupes (a) horizontale et (b) transverse.

Les cavités de cristal photonique étudiées dans ce manuscrit sont des cavités de type L3, dont la structure est schématisée sur les figures 3.1(a) et (b) (coupes horizontale et transverse respectivement). Le réseau constituant le cristal photonique est un réseau de trous triangulaire (voir chapitre 1), de période a et de rayon r_0. Le défaut est inclus dans le cristal par l'omission lors de la fabrication de trois trous alignés (d'où la dénomination « L3 »). La couche confinante d'épaisseur e est en nitrure de silicium Si_3NO_4, déposée sur un substrat de verre. Les trous sont gravés dans la couche de nitrure de silicium avec une épaisseur $L > e$.

Dans cette section, nous décrivons le procédé de fabrication employé pour fabriquer les échantillons étudiés dans le chapitre suivant. Nous caractériserons ensuite une de ces cavité par AFM.

3.1.1 Procédé de fabrication

Les cavités étudiées dans cette thèse ont été réalisées par un procédé CMOS (« Complementary Metal Oxide Semiconductor ») au Laboratoire d'Analyse et d'Architecture des Systèmes (LAAS) à Toulouse dans l'équipe de photonique par Olivier Gauthier-Lafaye et Sophie Bonnefont. Les étapes de la synthèse sont présentées sur la figure 3.2.

Une couche de nitrure de silicium (Si_3NO_4) d'indice $n = 2,1$ à 860 nm et d'épaisseur $e =$ 280 nm (valeurs déterminées à l'INSP par ellipsométrie avec l'aide de Bruno Gallas) est tout d'abord déposée par LPVCD (« Low Pressure Chemical Vapor Deposition ») sur un substrat

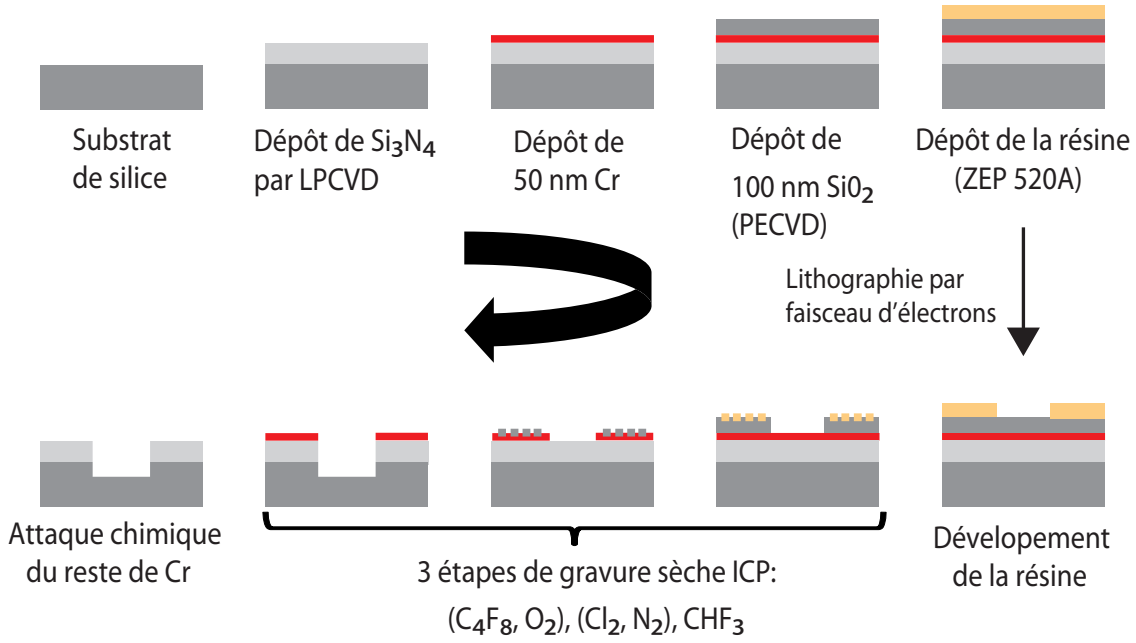

FIGURE 3.2 – Etapes de fabrication des cristaux photoniques de nitrure de silicium sur substrat de verre.

de verre. Le substrat a une épaisseur d'environ 1 mm et est donc considéré comme infini par rapport à la couche de diélectrique. Le dépôt est réalisé à haute température afin de réduire les contraintes dans la couche. Une couche de chrome de 50 nm d'épaisseur est ensuite déposée. Elle sert de masque solide pour la gravure des trous et assure également l'évacuation des charges produites par le faisceau d'électrons qui dessinera le motif de la structure photonique. Enfin, une couche de SiO_2 est déposée sur la couche de chrome par PE-CVD (« Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition ») et sert de masque pour la gravure du chrome.

La lithographie par faisceau d'électrons est réalisée à l'aide d'un système Raith 150, avec une couche de résine commerciale ZEP 520A. Les couches sont ensuite gravées par ICP-RIE (« Inductively Coupled Plasma Reactive Ion Etching »), et l'utilisation de CHF_3 permet d'ouvrir la couche supérieure de silice. Le masque de chrome est ouvert en utilisant un procédé chimique à base de Cl_2, et la gravure profonde du cristal photonique est réalisée par procédé chimique $CF_4 - O_2$ et permet d'obtenir des trous quasiment verticaux. Après la gravure, le masque de chrome restant est dissout par gravure de chrome standard.

La photographie 3.3(a) montre l'échantillon fabriqué au LAAS, chaque losange correspondant à un cristal photonique au centre duquel est située une cavité. Chacune de ces structures possède une géométrie différente. Nous reviendrons sur ce point après avoir caractérisé une cavité par AFM.

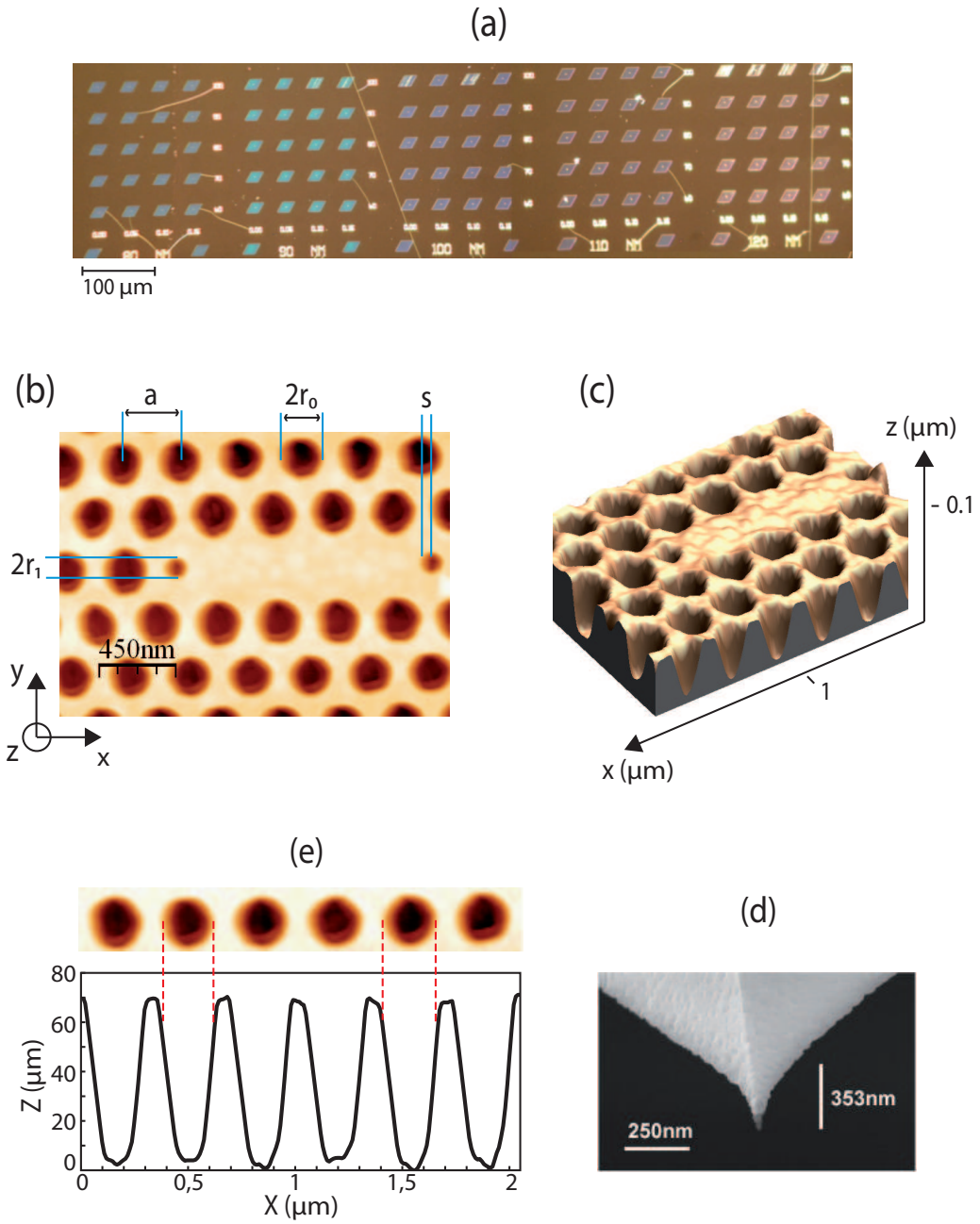

Figure 3.3 – (a) Photographie de l'échantillon fabriqué au LAAS de Toulouse. Chaque losange correspond à un cristal photonique, au centre duquel est situé une cavité. (b) et (c) Caractérisation par AFM d'une cavité de paramètres $a = 345\,\text{nm}$, $r_0 = 130\,\text{nm}$, $r_1 = 70\,\text{nm}$ et $s = 15a$: (b) image par AFM à deux dimensions et (c) à trois dimensions de la cavité. (d) Agrandissement des trous de l'image par AFM (a), et leur profil. (e) Image SEM d'une pointe AFM, réalisée au CEMES de Toulouse par Emmanuelle Daran.

3.1.2 Caractérisation AFM

Les cavités sont caractérisées par AFM à l'Institut des NanoSciences de Paris en collaboration avec Emmanuelle Lacaze. Les figures 3.3(b) et (c) représentent les images par AFM d'une cavité réalisée par le procédé décrit plus haut, en deux et trois dimensions respectivement. Cette cavité est une cavité « modifiée », en comparaison avec les schémas 3.1, c'est-à-dire qu'une légère modification a été apportée à sa géométrie. Les paramètres modifiés sont le rayon r_1 des trous aux bords de l'axe long de la cavité tel que $r_1 \neq r_0$, et leur position, légèrement décalée d'une distance s vers l'extérieur.

On mesure une période $a = 345 \pm 1\,\text{nm}$, et ce pour tous les échantillons étudiés dans ce manuscrit. Pour l'échantillon présenté sur les figures 3.3(b) et (c), le rayon des trous composant le cristal photonique vaut $r_0 = 130\,\text{nm}$, et le rayon des trous aux bords de la cavité vaut $r_1 = 70\,\text{nm}$. Les trous de bord sont décalés d'une distance $s = 52 \pm 1\,\text{nm} = 0,15a$. Le calcul de la moyenne quadratique de la hauteur à la surface de la cavité nous permet d'estimer la rugosité de surface à moins de 2 nm.

La figure 3.3(e) est un agrandissement des trous de l'image par AFM 3.3(b), au-dessous desquels nous avons tracé le profil. On mesure une profondeur des trous de 70 nm, et une inclinaison de leur paroi d'environ 50°. Cependant ces valeurs ne sont pas significatives, la forme des trous étant convoluées par la forme de la pointe AFM, qui n'est pas assez fine pour sonder la profondeur totale des trous. Une image au microscope électronique à balayage, réalisée au LAAS, d'une pointe AFM (qui n'est pas celle ayant servi pour nos mesures) est présentée sur la figure 3.3(e), sur laquelle on constate que le diamètre de la pointe augmente très vite. Il ne nous est donc pas possible d'estimer ni la profondeur ni la verticalité des trous (excepté que leur profondeur est supérieure à 70 nm et leur inclinaison inférieure à 50°). Pour la même raison, nous supposons que les valeurs des rayons r_0 et r_1 sont sous-estimées.

3.1.3 Géométrie des cavités

L'influence sur les modes de la géométrie des cavités de cristal photonique est un sujet dont l'étude provoque un engouement important depuis un peu plus d'une dizaine d'années. En effet, le contrôle sur la position spectrale et le facteur de qualité des modes résonants obtenu par la modification de certains paramètres a permis à la communauté scientifique d'adopter une démarche beaucoup plus active quant à l'utilisation des cavités de cristal photonique pour des applications expérimentales.

Les modifications en question sont principalement liées à la taille des trous du cristal [88–94], leur période [87, 90, 92, 93, 95–99], la position des trous situés aux bords de la cavité [83, 84, 88, 95, 98, 100–106] et leur taille [87, 88, 100, 103, 104, 106]. Des travaux sur l'épaisseur de la couche guidante [93, 107] et la forme des trous situés aux bords de la cavité [104] ont également été réalisés.

Dans ce manuscrit, les paramètres dont nous étudions l'influence théorique et expérimentale sont le rayon r_0 ($95 - 145\,\text{nm}$) des trous du cristal, le rayon r_1 ($70 - 100\,\text{nm}$) des trous situés aux bords de l'axe long de la cavité et le décalage d'une distance s ($0 - 0,15a$) vers l'extérieur de la cavité de ces trous de bord (voir l'image AFM 3.3(b)), l'optimisation de ces paramètres

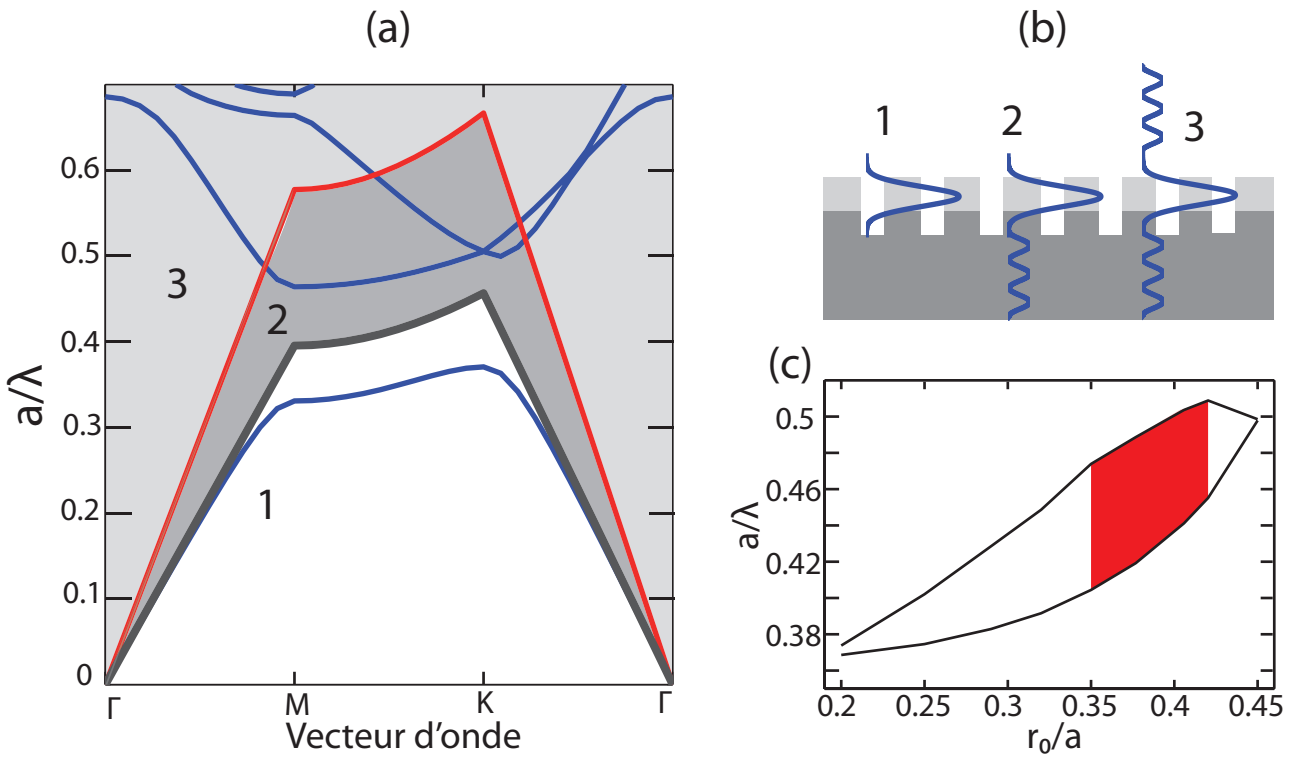

Figure 3.4 – (a) Diagramme de bandes de polarisation TE d'un cristal photonique sur verre, constitué de trous organisés en un réseau triangulaire de période a percés dans une couche d'indice 2,1. Les régions situées au-dessous du cône de lumière du substrat, entre le cône de lumière du substrat et celui de l'air, et au-dessus du cône de lumière de l'air, sont numérotées 1, 2 et 3 respectivement. (b) Schéma des profils verticaux des modes se propageant dans les régions 1, 2 et 3 du diagramme (a). (c) Evolution des limites en fréquence réduite a/λ de la bande interdite d'un cristal photonique sur substrat en fonction du rapport r_0/a.

ayant fait l'objet de premières études théoriques lors de la thèse de Céline Vion [66].

La suite de ce chapitre est consacrée à l'étude théorique des propriétés optiques de ces cavités.

3.2 Substrat de verre et modes résonants

Les structures photoniques étudiées dans cette thèse sont déposées sur un substrat de verre. Dans le premier chapitre, nous avons vu que le diagramme de bandes d'un cristal photonique membranaire présente un cône de lumière, constitué de l'ensemble des modes non confinés par la couche guidante. Le milieu entourant la membrane étant l'air, la limite inférieure de ce cône de lumière, la ligne de lumière, est définie par la relation de dispersion de la lumière dans l'air : $\omega = c\,\|\boldsymbol{k}\|$.

L'ajout d'un substrat à une structure membranaire modifie une des interfaces de la membrane, et le diagramme de bandes de la structure s'accompagne alors d'un second cône de

lumière, dont la limite inférieure est définie par la relation $\omega = c\,\|\boldsymbol{k}\|/n$, où n est l'indice du substrat. Les états situés au-dessus de cette limite sont couplés aux modes radiatifs du substrat. Le diagramme de bandes de polarisation transverse électrique (TE) d'un cristal photonique de paramètre $r_0/a = 0,38$ sur substrat de verre est présenté sur la figure 3.4(a), sur laquelle la partie en gris clair correspond au cône de lumière de l'air (ligne de lumière en rouge) et la partie en gris foncé à celui du verre (ligne de lumière en noir).

On distingue alors trois régions. Dans chacune de ces région, les modes se propagent différemment, leur profil vertical étant schématisé sur la figure 3.4(b). Ces régions sont :

- La région située sous le cône de lumière associé au substrat de verre (numérotée 1 sur le diagramme 3.4). Les modes situés dans cette région sont parfaitement guidés par la couche confinante, sans perte, de la même façon que dans une structure membranaire (voir chapitre 1).
- La région située entre le cône de lumière associé au substrat et celui associé à l'air (numérotée 2 sur le diagramme 3.4). Les modes se propagent dans le cristal mais sont à présent couplés aux modes radiatifs du substrat.
- La région située au-dessus du cône de lumière associé à l'air (numérotée 3 sur le diagramme 3.4). Les modes subissent des pertes à la fois dans le substrat et l'air.

La figure 3.4(c) représente l'évolution calculée avec MPB de la bande interdite d'un cristal photonique sur substrat de verre, définie par la largeur entre la fréquence réduite de la bande de plus basse énergie au point K de la zone de Brillouin et celle de la seconde bande de plus basse énergie au point M. Ainsi pour une valeur de a fixée, l'augmentation du rayon des trous du cristal photonique r_0 a deux effets :

- la bande interdite se décale vers les hautes énergies. En effet, à mesure que r_0 augmente, la proportion d'air dans la structure augmente. La conséquence est une diminution de l'indice effectif de la structure photonique, et donc une augmentation de l'énergie des modes conformément au théorème variationnel (voir 1.3.4).
- la bande interdite s'élargit, puis se referme. Dans le chapitre 1 (1.4.3), nous avons vu que l'énergie d'un mode est liée à la distribution spatiale de son champ électrique dans le cristal photonique. Pout le mode TE de la bande de plus basse énergie, le champ électrique est distribué essentiellement dans le matériau de plus fort indice, ce qui abaisse son énergie. A l'opposé et pour respecter la condition d'orthogonalité entre les modes de même vecteur $\boldsymbol{k}$ dans la zone de Brillouin, le champ électrique du mode de la seconde bande de plus basse énergie est principalement distribué dans les trous d'indice faible, ce qui augmente son énergie. Dans un réseau de trous triangulaire, la différence d'énergie entre ces deux modes détermine la largeur de la bande interdite TE. Ainsi, lorsque les trous sont trop petits (ou trop grands), l'énergie des deux modes est en grande partie concentrée dans le matériau de fort indice (ou d'indice faible), et l'énergie entre les deux modes n'est pas suffisamment contrastée pour ouvrir une bande interdite.

D'après les paramètres de nos cavités mesurés par AFM ($a = 345\,\text{nm}$ et $120 \leq r_0 \leq 145\,\text{nm}$), les bandes interdites pour la polarisation transverse électrique de nos échantillons sont situées dans la zone rouge sur la figure 3.4(c). La bande interdite pour $r_0/a = 0,35$ est centrée à $785\,\text{nm}$ ($a/\lambda = 0,44$) et comprise entre 730 et $855\,\text{nm}$; celle formée pour $r_0/a = 0,42$ est centrée à $720\,\text{nm}$ ($a/\lambda = 0,48$) et comprise entre 680 et $760\,\text{nm}$. Nos échantillons présentent

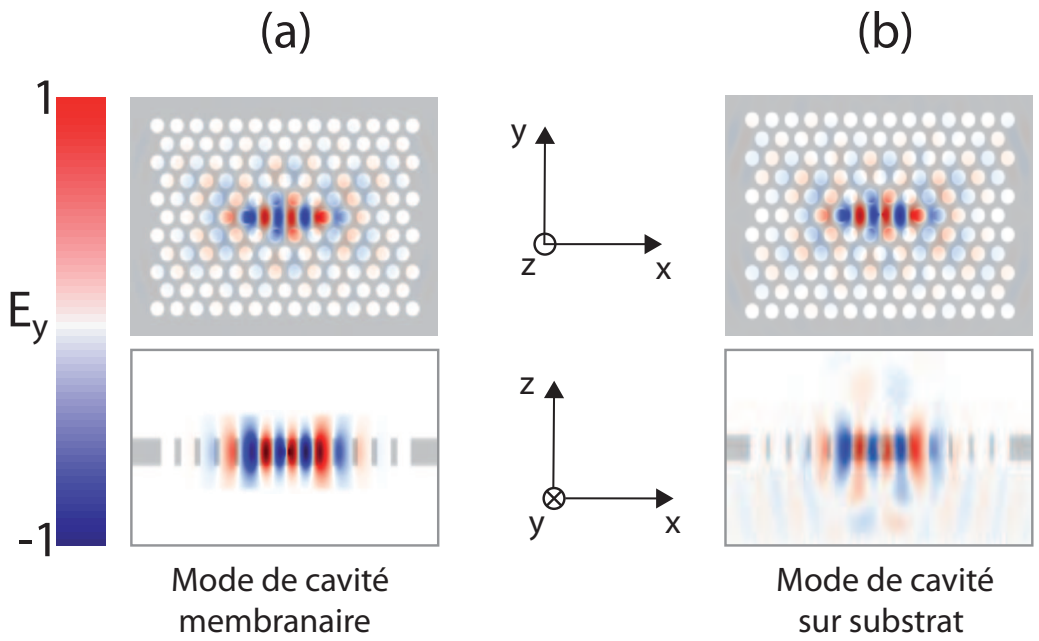

Figure 3.5 – Coupes horizontales et transverses de la distribution de E_y d'un mode résonant (a) de cavité membranaire et (b) sur substrat respectivement. Le mode de cavité sur substrat s'étend d'avantage dans le substrat que le mode de cavité membranaire. Les deux cavités ont pour paramètre $r_0/a = 0,3$.

donc théoriquement des bandes interdites dans le domaine visible.

On remarque que le cône de lumière du substrat de verre est situé dans la bande interdite du cristal photonique. Les modes résonants de cavité étant également situés dans la bande interdite, ils seront toujours couplés de façon importante aux modes radiatifs du substrat (ie pertes dans le substrat).

Nous illustrons cela sur la figure 3.5(a) et (b), qui représentent la distribution du champ électrique $E_y = \boldsymbol{E}\cdot\hat{\boldsymbol{y}}$ calculée par FDTD (principe expliqué dans la section suivante) respectivement d'un mode de cavité membranaire et de cavité sur substrat. Les coupes horizontales de ces distributions sont semblables, le confinement par le réseau entourant la cavité étant équivalent. En revanche, leur coupe transverse met en évidence la différence dans la qualité du confinement entre les deux structures : le mode est bien confiné verticalement dans la cavité membranaire, mais s'étend d'avantage dans le substrat dans la cavité sur substrat.

Le facteur de qualité d'un mode résonant est défini par le rapport de la puissance emmagasinée dans la cavité sur celle qui s'en échappe. Ainsi, la conséquence principale du confinement moins efficace induit par le substrat est une diminution du facteur de qualité du mode.

Dans la section suivante, nous décrivons le principe de la méthode de FDTD qui sera utilisé pour modéliser les cavités.

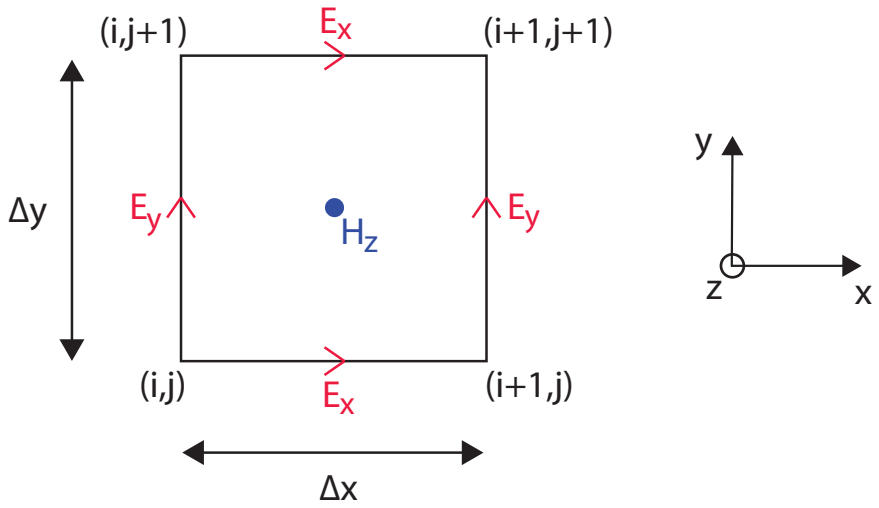

FIGURE 3.6 – Discrétisation spatiale dans la méthode FDTD pour le cas d'une onde TE.

3.3 Méthode de FDTD

Nous cherchons à présent à caractériser numériquement les modes résonants de la cavité. Pour cela, j'utilise une méthode de FDTD (« Finite Difference Time Domaine ») comme outil de simulation. L'avantage de cette méthode par rapport à celle des ondes planes étendues utilisée jusqu'à présent (MPB) est la possibilité de traiter des situations non périodiques dans le temps (temps de vie du mode confiné) et dans l'espace (défaut). En particulier, dans le cas d'une cavité incluse dans un cristal photonique de dimensions finies, les modes résonants sont systématiquement couplés à des modes de fuite, et la FDTD nous permet d'avoir accès au spectre et au facteur de qualité du mode, relié à son temps de vie dans la cavité. Le logiciel de FDTD utilisé est le logiciel libre MEEP (« MIT Electromagnetic Equation Propagation ») développé au MIT. La description du principe et de l'utilisation de ce logiciel sont rassemblées sur le site http ://ab-initio.mit.edu/meep/.

Nous décrivons brièvement dans cette section les outils utilisés par MEEP pour le calcul de l'évolution temporelle d'un champ et du flux à travers une surface (spectre).

3.3.1 Calcul de l'évolution temporelle d'un champ

Le problème à résoudre est le calcul du champ total à chaque instant t lorsqu'une onde dépendante du temps se propage dans un cristal photonique de taille finie. Cette onde est décrite par les équations de Maxwell qui s'écrivent pour un milieu non dispersif :

$$\nabla \times \boldsymbol{E} = -\mu_0 \frac{\partial \boldsymbol{H}}{\partial t} \tag{3.1}$$

$$\nabla \times \boldsymbol{H} = \epsilon_0 \epsilon_r \frac{\partial \boldsymbol{E}}{\partial t} \tag{3.2}$$

La bande interdite formée par nos cristaux photoniques est une bande interdite pour les ondes transverses électriques (TE). Afin d'expliquer le principe de la FDTD, nous nous plaçons dans cette polarisation, pour laquelle $H_x = H_y = 0$ et $E_z = 0$. Pour une telle onde, la projection sur les axes x, y et z des équations (3.1) et (3.2) donne :

$$\epsilon_0 \epsilon_r \frac{\partial E_x}{\partial t} = \frac{\partial H_z}{\partial y}, \tag{3.3}$$

$$\epsilon_0 \epsilon_r \frac{\partial E_y}{\partial t} = -\frac{\partial H_z}{\partial x}, \tag{3.4}$$

$$-\mu_0 \frac{\partial H_z}{\partial t} = \frac{\partial E_y}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial y}, \tag{3.5}$$

La FDTD consiste à discrétiser les équations de Maxwell dans l'espace et le temps par la méthode des cellules de Yee [108] et dont une cellule unitaire à deux dimensions est présentée sur la figure 3.6. La cellule ici est un carré de dimensions $\Delta x \Delta y$, avec Δx et Δy la résolution spatiale suivant les axes x et y [1], dans lequel les composantes du champ électrique et magnétique de l'onde TE sont calculées à des points bien précis, sur les arêtes et au centre respectivement. Ainsi, pour un point de coordonnées (i,j) (coin en bas à gauche du carré), la composante E_x est calculée au point $(i + 1/2, j)$ et la composante E_y au point $(i, j + 1)$. La composante H_z est calculée au point $(i + 1/2, j + 1/2)$. Les différentes composantes de l'onde TE sont donc calculées à des points séparés d'un demi pas de la résolution spatiale, c'est-à-dire $\Delta x/2$.

De la même façon, E_x et E_y sont calculés à différents instants de H_z, ces instants étant séparés par un demi pas de temps $\Delta t/2$ (discrétisation dans le temps). Si les composantes du champ électrique sont calculées à l'instant $t = n\Delta t$, H_z est calculé à l'instant $t = (n + 1/2)\Delta t$. On remplace alors dans les équations de Maxwell les dérivées spatiales et temporelles par des différences finies centrées de la forme :

$$\frac{df}{du}(u_0) = \frac{f(u_0 + \Delta u) - (f(u_0) - \Delta u)}{2\Delta u}$$

ce qui permet de réecrire par exemple l'équation (3.5) de la façon suivante :

$$\mu_0 \frac{H_z|_{i+1/2,j+1/2}^{n+1/2} - H_z|_{i+1/2,j+1/2}^{n-1/2}}{\Delta t} = -\frac{E_y|_{i+1,j+1/2}^{n} - E_y|_{i,j+1/2}^{n}}{\Delta x} + \frac{E_x|_{i+1/2,j+1}^{n} - E_x|_{i+1/2,j}^{n}}{\Delta y}$$

1. ici $\Delta x = \Delta y$

puis :

$$\begin{aligned} H_z|_{i+1/2,j+1/2}^{n+1/2} =& H_z|_{i+1/2,j+1/2}^{n-1/2} \\ &- \frac{1}{\mu_0}\frac{\Delta t}{\Delta x}[E_y|_{i+1,j+1/2}^{n} - E_y|_{i,j+1/2}^{n}] \\ &+ \frac{1}{\mu_0}\frac{\Delta t}{\Delta x}[E_x|_{i+1/2,j+1}^{n} - E_x|_{i+1/2,j}^{n}] \end{aligned} \tag{3.6}$$

Les différenciations des équations (3.3) et (3.4) se construisent de la même façon. Ainsi, le champ H_z à l'instant $(n+1/2)\Delta t$ est calculé avec les champs E_x et E_y eux-mêmes calculés à l'instant $n\Delta t$, puis les champs E_x et E_y à l'instant $(n+1)\Delta t$ sont déduits du champ H_z calculé à l'instant $(n+1/2)\Delta t$, et ainsi de suite. En quadrillant l'espace de simulation par des cellules de Yee, les composantes de l'onde TE sont donc calculées dans le temps de façon itérative en tout point de la grille.

Une densité de courant (terme de source) séparable en temps et en position $J(x,t) = A(x)\cdot f(t)$ est ajoutée à ces équations pour simuler le champ incident. La source J est équivalente à un dipôle et $A(x)$ est pris uniforme. Nous utilisons comme source une impulsion gaussienne en temps de la forme $f(t) = \exp(-i\omega t - (t-t_0)^2/(2w^2))$ où w détermine la largeur. La forme de la source peut être définie comme ponctuelle, linéique ou planaire.

3.3.2 Calcul du flux à travers une surface

Le logiciel MEEP permet de calculer le flux du champ électromagnétique à travers une surface dont nous définissons la position et les dimensions. Typiquement, placer une structure photonique entre la source et la surface définie permet, en calculant la puissance transmise à travers cette surface, de simuler le spectre de transmission de la structure. Ce calcul est effectué en deux étapes :

1. en chaque point de la surface définie, MEEP calcule les transformées de Fourier $\boldsymbol{E}(\omega)$ et $\boldsymbol{H}(\omega)$ par rapport au temps. Par exemple, pour un point (x,y) de la surface donné, la transformée de Fourier du champ électrique $\boldsymbol{E}(x,y,\omega)$ s'écrit :

$$\boldsymbol{E}(x,y,\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int e^{i\omega t}\boldsymbol{E}(x,y,t)dt \tag{3.7}$$

2. le flux $P(\omega)$ à travers la surface et à une fréquence ω donnée est alors déduit en calculant l'intégrale du vecteur de Poynting (dans la direction $\hat{\boldsymbol{n}}$ à la surface) de ces transformées de Fourier :

$$P(\omega) = Re\left(\hat{\boldsymbol{n}}\int \boldsymbol{E}(x,y,\omega)^* \times \boldsymbol{H}(x,y,\omega)d^2x\right) \tag{3.8}$$

L'équation (3.8) appliquée sur une gamme de fréquence permet d'obtenir un spectre.

3.3.3 Conditions aux limites

Enfin, pour simuler l'interaction d'une onde électromagnétique avec une structure de dimension finie mais dans un espace ouvert, MEEP permet l'inclusion d'une PML (« Perfectly Matched Layer »), couche absorbante modélisée de façon à ce que le champ ne soit pas réfléchi à son contact. Sa description mathématique est donnée dans les références [109, 110]. Entourer la structure simulée d'une telle couche permet de tronquer l'espace de simulation et donc de réduire les temps de calcul, sans introduire d'interférences entre des ondes incidentes et réfléchies qu'induisent l'utilisation d'une couche absorbante ordinaire.

3.4 Simulations FDTD des modes résonants d'une cavité L3

3.4.1 Paramètres généraux des simulations

Dans cette section, nous cherchons à étudier théoriquement les modes résonants d'une cavité L3 modifiée dont les paramètres sont les suivants :

- $a = 345\,\text{nm}$ et $r_0 = 130\,\text{nm}$ soit $r_0/a = 0,38$, $r_1 = 100\,\text{nm}$ et $s = 0$,
- cavité incluse dans un cristal photonique constitué de 11×14 rangées de trous, soit $N = 5$ rangées de part et d'autre de la cavité,
- épaisseur de la couche de nitrure de silicium $e_{Si_3NO_4} = 280\,\text{nm}$, d'indice $n_{Si_3NO_4} = 2,1$,
- profondeur des trous $L = 350\,\text{nm}$,
- substrat de verre d'indice $n = 1,46$ s'étendant jusqu'aux limites de la cellule de simulation, cellule dont la taille dépendra du type de simulation effectué,
- épaisseur de la PML de 100 nm, sur toutes les parois de la cellule de calcul.

L'étude des modes résonants se fait en deux étapes :

1. Le calcul du spectre des modes, qui s'effectue en plaçant une source spectralement large dans la cavité, afin de sonder les fréquences résonantes sur une gamme spectrale étendue. Le flux est intégré après l'extinction de la source. Les fréquences des modes sont alors déterminées par les pics présents dans le spectre.
2. Le calcul de la distribution de l'énergie $\|\boldsymbol{E}\|^2$, qui s'effectue en plaçant une source spectralement étroite centrée sur la fréquence d'un des modes déterminée par la première simulation. Ce calcul est effectué après l'extinction de la source.

Nous commençons par calculer le spectre des modes résonants.

3.4.2 Recherche des modes résonants

La bande interdite formée dans un réseau triangulaire de trous dont le rapport $r_0/a = 0,38$ est, d'après la courbe de l'évolution des bandes interdites 3.4(c), centrée à 765 nm (fréquence

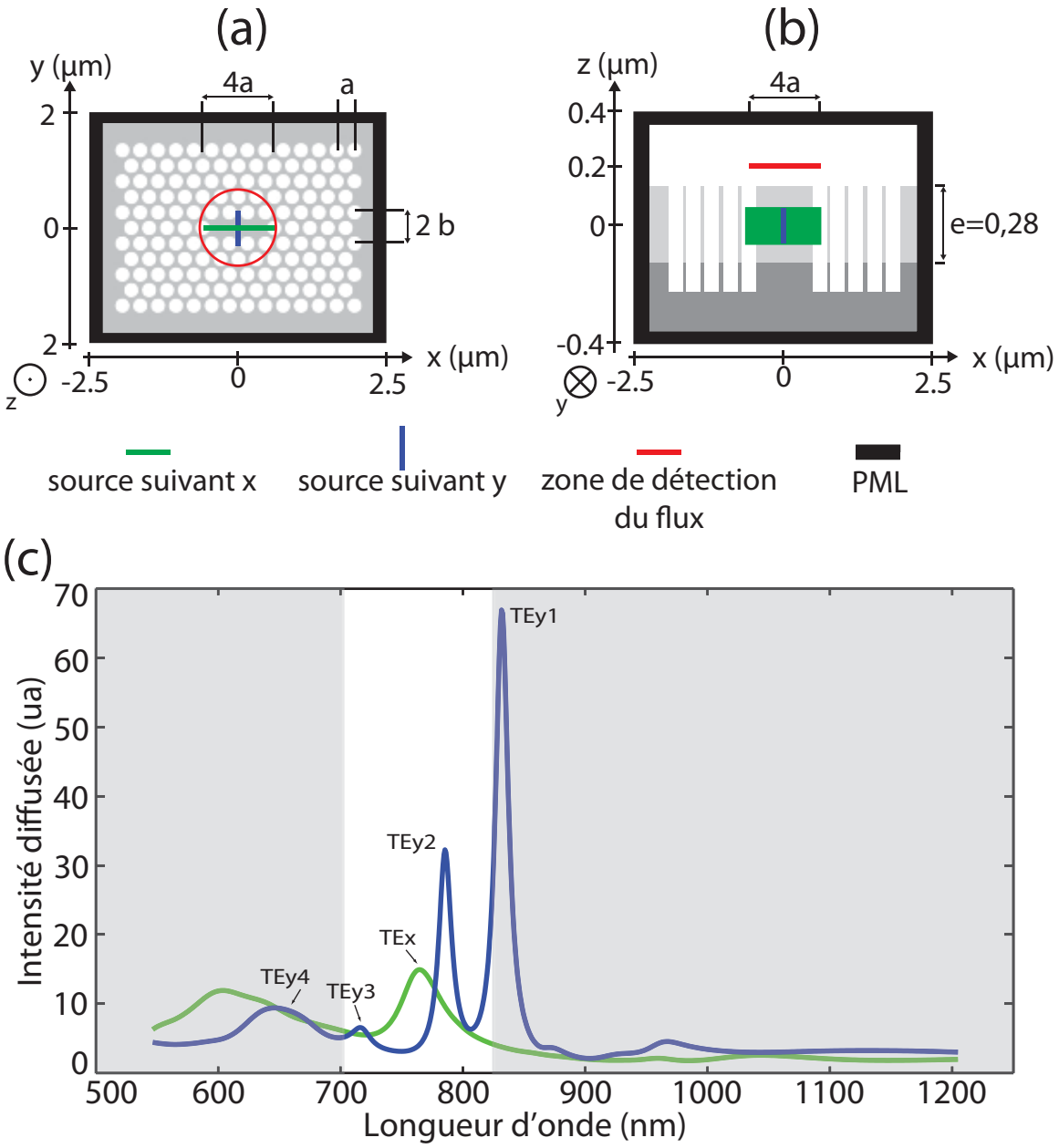

FIGURE 3.7 – (a) et (b) Schémas illustrant la géométrie de la simulation permettant de calculer le spectre des modes résonants : (a) coupe horizontale et (b) coupe transverse. (c) Spectres théoriques calculés en adoptant la géométrie illustrée en (a) et (b). La courbe bleue est obtenue en orientant la source suivant l'axe y (source bleue dans (a) et (b)) et la courbe verte en orientant la source suivant l'axe x (source verte dans (a) et (b)).

réduite $r_0/a = 0,45$) et comprise entre 705 et 825 nm. Nous calculons alors le spectre des modes d'une cavité incluse dans un tel cristal photonique avec les paramètres de simulation suivants (voir aussi schémas 3.7(a) et (b)) :

- source positionnée au centre de la cavité et centrée spectralement à $f = 1,62\,\text{eV}$ (765 nm) de largeur à mi-hauteur $df = 1.2\,\text{eV}$ ($> 200\,\text{nm}$, $df = w$ dans l'expression de la gaussienne 3.3.1). La forme de la source est planaire, orientée suivant les axes x ou y de la cavité. Nous verrons lors du calcul de la distribution de l'énergie des modes que cela permet d'exciter préférentiellement les modes de polarisation x ou y, respectivement. La longueur ℓ de la source est choisie de façon à être toujours supérieure à la taille de la cavité : $\ell = 4a$ lorsque la source est orientée suivant l'axe x, et $\ell = \sqrt{3}a$) lorsqu'elle est orientée suivant l'axe y. La taille en z de la source vaut $e/2$.
- taille de la cellule de calcul suivant z de 800 nm,
- zone de détection du flux du vecteur de Poynting située en champ proche à 200 nm au-dessus du plan médian de la cavité. La forme de cette zone est un cercle de rayon $4a$,
- résolution de 4 [2].

Les spectres obtenus sont présentés sur la figure 3.7(c). Les courbes bleue et verte correspondent aux spectres calculés en orientant la source suivant les axes y et x, respectivement. Les zones grisées correspondent aux fréquences situées en-dehors de la bande interdite omnidirectionnelle calculée par MPB.

Nous commençons par analyser le spectre obtenu avec la source orientée suivant l'axe y (en bleu sur la figure 3.7(c)). On observe quatre pics : deux pics très nets à 832 et 785 nm, un pic plus petit à 716 nm et un pic large à 647 nm. Nous nommons ces quatre pics TEy1, TEy2, TEy3 et TEy4 par ordre croissant d'énergie. Le spectre obtenu avec la source orientée suivant l'axe x (en vert sur la figure 3.9(c)) présente un pic situé à 764 nm, que nous nommons TEx.

Nous cherchons à présent à déterminer si ces pics correspondent à des modes résonants de la cavité. Pour cela, nous calculons la distribution spatiale du champ électrique aux fréquences de ces pics. Ces calculs nécessitent d'effectuer de nouvelles simulations avec une source spectralement étroite. Si ces pics correspondent à des modes résonants, cela permet de n'exciter qu'un seul mode à la fois. Les paramètres de ces simulations sont les suivants (voir aussi schéma 3.8(a)) :

- source centrée à la fréquence des pics repérés sur les spectres de la figure 3.7(c) et de largeur à mi-hauteur $df = 0,004\,\text{eV}$ ($\approx 2\,\text{nm}$),
- source centrée dans la cavité et orientée suivant l'axe y pour les pics TEy1, TEy2, TEy3 et TEy4 ; suivant x pour le pic TEx,
- taille de la cellule de calcul en z de $2\,\mu$m, afin d'observer l'évolution du champ électrique en champ lointain (pour la section suivante),
- résolution de 3.

2. La résolution définit la précision du maillage, c'est-à-dire le nombre de pas par unité de l'espace, unité qui pour nos simulations vaut 100 nm. La résolution spatiale est donc $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 100/4 = 25\,\text{nm}$. Il est important de noter que dans un calcul de FDTD, la résolution définit aussi le pas de temps, l'unité de temps étant égale à la période temporelle $1/f$. Pour une résolution de 4, le pas de temps vaut alors $1/(4f)$

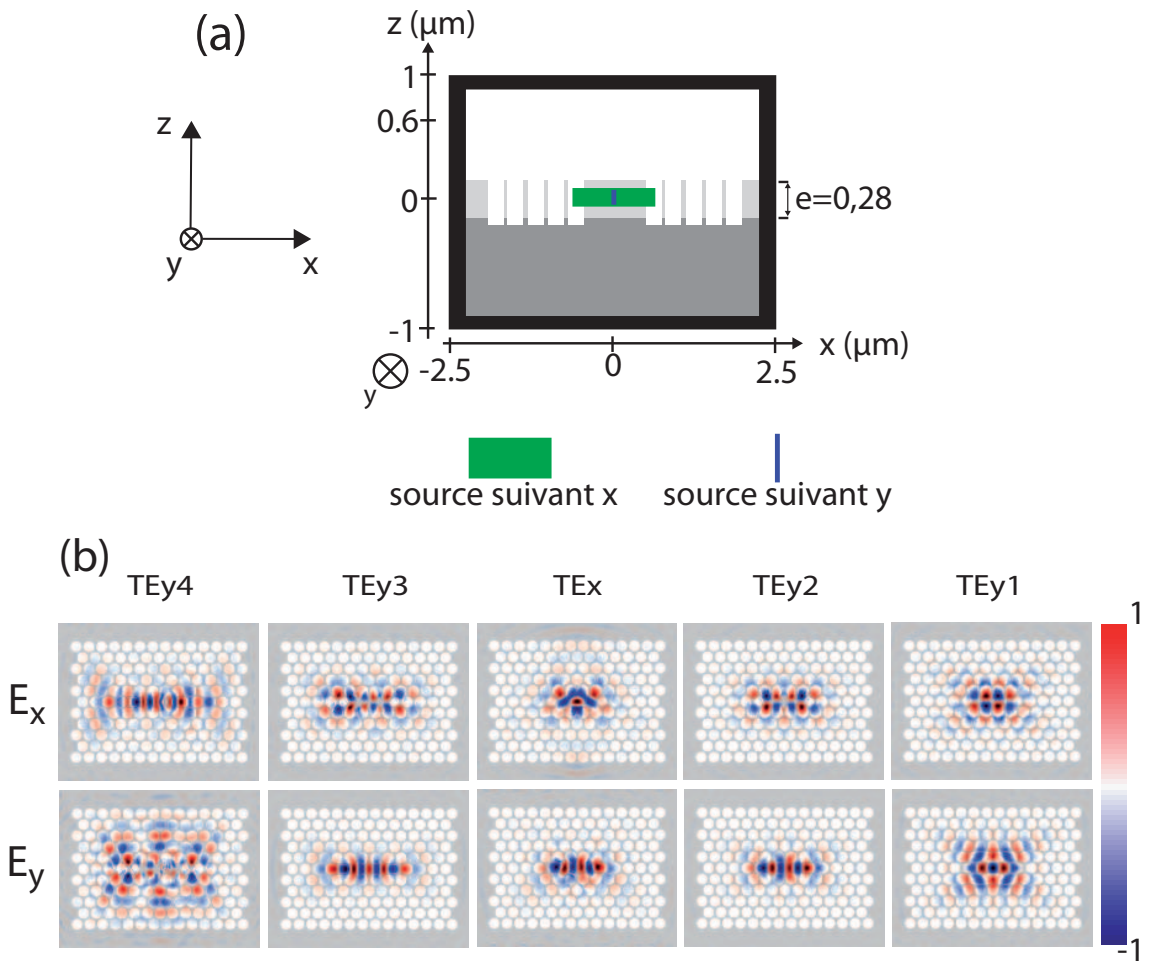

FIGURE 3.8 – (a) Schéma illustrant la géométrie de la simulation permettant de calculer les distributions de $|E_x|^2$ et $|E_y|^2$ des modes résonants identifiés sur le spectre de la figure 3.7(c). (b) Distributions de $|E_x|$ et $|E_y|$ des modes résonants TEy1, TEy2, TEx, TEy3 et TEy4 calculés dans le plan de la cavité à $z = 0$.

La figure 3.8(b) représente les distributions spatiales dans le plan de la cavité ($z = 0$ sur le schéma 3.8(a)) des champs électriques $E_x = \boldsymbol{E} \cdot \hat{\boldsymbol{x}}$ et $E_y = \boldsymbol{E} \cdot \hat{\boldsymbol{y}}$ lorsque la cavité est excitée aux fréquences des pics des spectres 3.7(b). Ces distributions sont calculées *après* l'extinction de la source.

On observe que les champs électriques dans tous les cas sont localisés dans la cavité et on en déduit que *chaque pic est un mode confiné de la cavité*. La hauteur des pics dépend du couplage de la source aux modes. On constate alors que tous les modes ne sont pas situés dans la bande interdite omnidirectionnelle calculée par MPB (partie de la figure 3.7(c) non grisée). Cependant, on remarque que le mode TEy1, légèrement situé en-dehors de la bande interdite, et le mode TEy4 largement situé en-dehors, sont aussi les deux modes dont la distribution spatiale du champ électrique est la moins localisée dans la cavité. Inversement, les modes TEy2, TEy3 et TEx sont centrés dans la bande interdite omnidirectionnelle et leur distribution est fortement localisée. La position spectrale d'un mode en fonction du centre de la bande interdite influe donc bien sur la qualité de son confinement.

3.4.3 Polarisation des modes résonants

Nous comparons dans cette section les distributions spatiales des champs électriques en champ proche et champ lointain. Le confinement du mode TEy4 étant faible, nous nous intéressons aux autres modes. Les paramètres de la simulation sont identiques à ceux décrits dans la section précédente pour le calcul des distributions de E_x et E_y, et le schéma illustrant la géométrie de la simulation est reproduit sur la figure 3.9(a).

La figure 3.9(b) trace pour chaque mode TEy1, TEy2, TEy3 et TEx la moyenne temporelle de la distribution spatiale de $|E_x|^2$ et $|E_y|^2$ dans le plan médian de la cavité ($z = 0$ sur la figure 3.9(a)). Nous avons montré sur le spectre 3.7(c) que certain modes sont mieux couplés à la source que d'autres, du fait de pics plus marqués. Pour cette raison, nous adaptons l'échelle de couleur d'un mode à l'autre. Par contre, cette échelle est la même au sein d'un même mode, afin de comparer la distribution de l'énergie des modes entre les axes x et y.

Pour chaque mode, on remarque que la distribution de l'énergie dans le plan de la cavité ($z = 0$) est presque aussi intense suivant les deux axes, avec des valeurs moyennes du rapport $|E_y|^2 / |E_x|^2$ pour les modes TEy1, TEy2 et TEy3, et $|E_x|^2 / |E_y|^2$ pour le mode TEx, supérieures à 1, mais ne permettant pas d'attribuer une polarisation bien définie aux modes. Par exemple pour le mode TEy2, $\langle |E_y|^2/|E_x|^2 \rangle = 2,5$.

En revanche, le même rapport calculé dans un plan situé à 600 nm au-dessus de la surface du cristal (figure 3.9(c)), distance où la composante rayonnée est prédominante par rapport à la composante évanescente de champ proche, donne des valeurs largement supérieures à 1, indiquant pour chaque mode une polarisation très nette du champ rayonné suivant l'axe y ou x. Par exemple toujours pour le mode TEy2, $\langle |E_y|^2/|E_x|^2 \rangle = 25$. Ainsi en champ lointain, les modes TEy1, TEy2 et TEy3 sont polarisés suivant l'axe y et le mode TEx est polarisé suivant l'axe x.

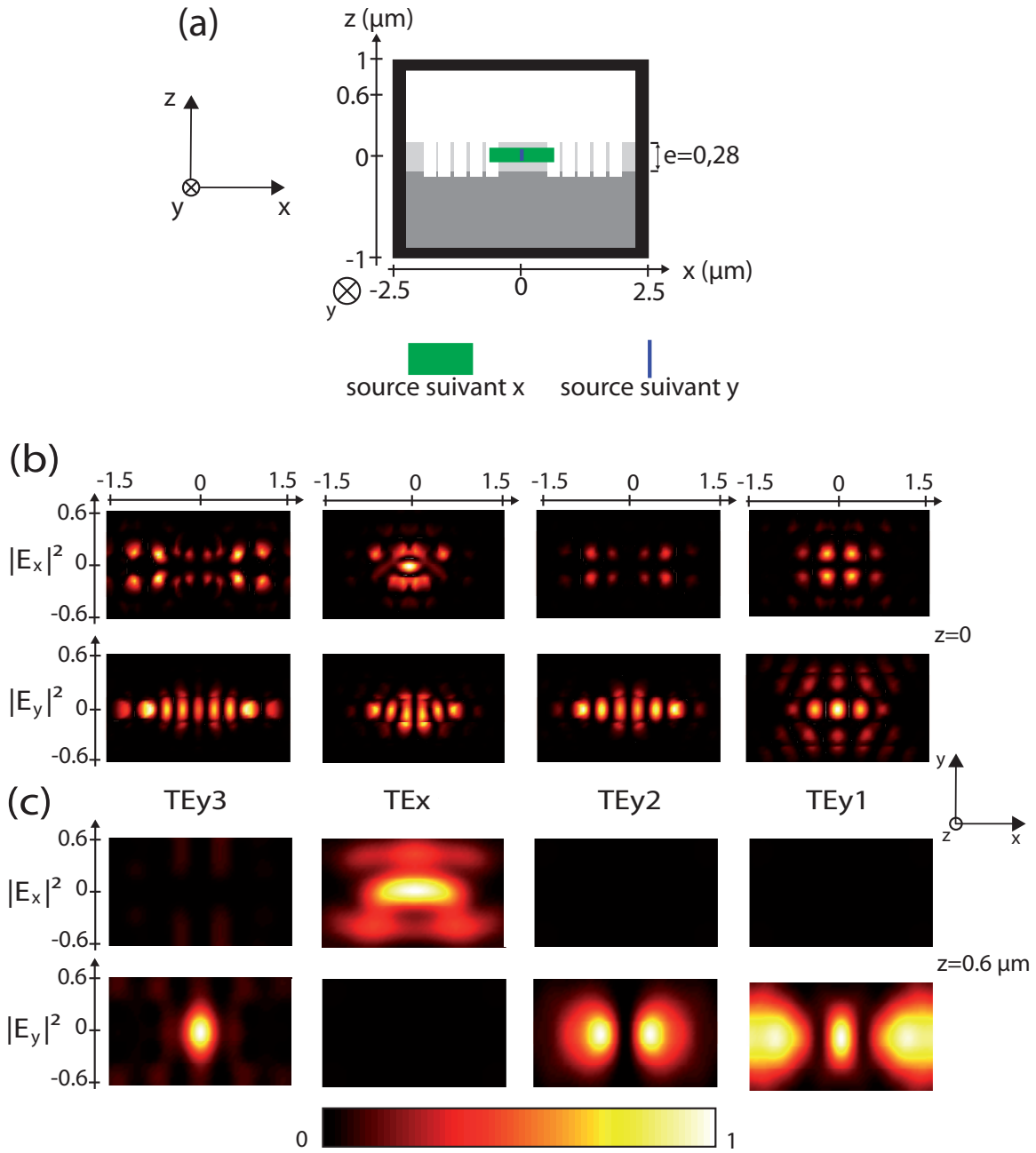

FIGURE 3.9 – (a) Schéma illustrant la géométrie de la simulation permettant de calculer les distributions de $|E_x|^2$ et $|E_y|^2$ des modes résonants identifiés sur le spectre de la figure 3.7(c). (b)(c) Distributions de $|E_x|^2$ et $|E_y|^2$ des modes résonants TEy1, TEy2 et TEx calculés à (b) $z = 0$ et (c) $z = 600\,\text{nm}$.

3.4.4 Facteur de qualité des modes résonants

Nous calculons à présent le facteur de qualité des modes TEy1, TEy2, TEy3 et TEx. Le facteur de qualité d'un mode résonant de fréquence ω_0 est défini comme le rapport de l'énergie emmagasinée dans le résonateur moyennée dans le temps sur l'énergie dissipée par cycle :

$$Q = \frac{\text{Energie emmagasinée}}{\text{Energie dissipée par cycle}} = \omega_0 \frac{U}{P} \tag{3.9}$$

où U est l'énergie emmagasinée dans le résonateur et P la puissance dissipée. Par conservation de l'énergie, la puissance dissipée moyennée sur un cycle est égale à l'opposé de la variation de l'énergie emmagasinée U, et on a d'après la relation (3.9) :

$$P = -\frac{dU}{dt} = -\frac{\omega_0}{Q} U \tag{3.10}$$

La solution de l'équation (3.10) s'écrit :

$$U(t) = U_0 \, e^{-\omega_0 t/Q} \tag{3.11}$$

L'équation (3.11) signifie que l'énergie emmagasinée dans la cavité décroît exponentiellement avec un temps de déclin $\tau = Q\omega_0$, et le facteur de qualité Q est donc une mesure du temps de vie du mode résonant de la cavité. La dépendance en temps de l'énergie emmagasinée U implique que le champ oscillant dans la cavité est amorti :

$$E(t) = E_0 \, e^{-\omega_0 t/2Q} \, e^{-i\omega_0 t} \tag{3.12}$$

Le facteur de qualité est alors le nombre de périodes optiques nécessaire pour que l'énergie baisse de $exp(-2\pi)$, et est calculé de la façon suivante :

$$\frac{1}{Q} = \frac{2\,p\,exp(-2\pi)}{\omega_0} \tag{3.13}$$

uù p est le taux du déclin de l'énergie dans la cavité. La méthode décrite par l'équation 3.13 est celle utilisée par MEEP, via un algorithme appelé « Harminv », pour déterminer le facteur de qualité des modes résonants.

Les facteurs de qualité des modes TEy1 et TEy2 déterminés par Harminv sont $Q = 65$ et 60 respectivement. On constate que les facteurs de qualité calculés sont très bas. Harminv ne permet pas une analyse harmonique pour $Q < 50$, c'est pourquoi les pics les plus larges ne sont pas identifiés comme correspondant à des modes, ce qui est le cas des modes TEy3 et TEx.

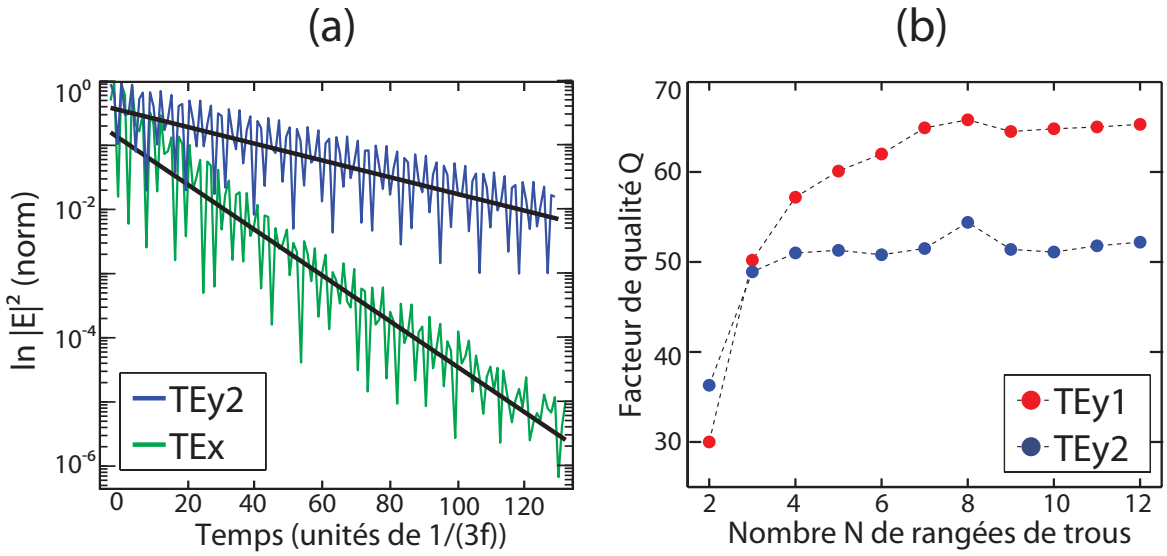

FIGURE 3.10 – (a) Déclins en échelle logarithmique de la quantité $|E_x|^2 + |E_y|^2$ des modes TEy2 (bleu) et TEx (vert) en fonction du temps (en unités de $1/(3f)$), les droites noires correspondant à des ajustements polynômiaux au premier ordre sur $\ln\left(|E_x|^2 + |E_y|^2\right)$. Les paramètres de la cavités sont $a = 345\,\text{nm}, r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 100\,\text{nm}$. (b) Evolution du facteur de qualité des modes TEy1 (points rouges) et TEy2 (points bleus) en fonction du nombre N de rangées de trous pour une cavité de paramètres $a = 345\,\text{nm}$ et $r_0 = r_1 = 130\,\text{nm}$.

Afin d'estimer le facteur de qualité sans Harminv, nous traçons par exemple sur la figure 3.10(a) le déclin de la quantité $|E_x|^2 + |E_y|^2$ des modes TEy2 (bleu) et TEx (vert) en fonction du temps. Le taux du déclin de l'énergie p est calculé en effectuant un ajustement polynômial d'ordre 1 sur $\ln\left(|E_x|^2 + |E_y|^2\right)$, et on trouve avec la relation (3.13) des facteurs de qualité de $Q = 23$ pour le mode TEx et de $Q = 65$ pour le mode TEy2, très proche de celui calculé par Harminv. La même méthode nous permet d'estimer le facteur de qualité des modes TEy1 et TEy3 à $Q = 69$ et 30 respectivement. Dans le reste de ce manuscrit, nous utilisons cette méthode pour calculer les facteurs de qualité théoriques des modes résonants de facteurs de qualité $Q < 50$.

La figure 3.10(b) représente l'évolution du facteur de qualité des modes TEy1 (points rouges) et TEy2 (points bleus) en fonction du nombre de rangées N de la cavité (cette étude préliminaire a été réalisée sur la cavité, différente, $r_0 = r_1 = 130\,\text{nm}$). On constate qu'un palier est très vite atteint pour les deux modes, à $Q = 65$ pour $N = 7$ pour le mode TEy1 et à $Q = 50$ pour N=5 pour le mode TEy2. Ceci justifie a posteriori que nous ayons effectué nos calculs avec $N = 5$ rangées de trous de part et d'autre de la cavité, l'écart entre le facteur de qualité du mode TEy1 calculé pour $N = 5$ (Q=60) et $N = 7$ étant minime.

3.4.5 Lien avec la largeur à mi-hauteur des pics

Nous établissons le lien entre la définition générale du facteur de qualité (3.9) et la définition spectrale du facteur de qualité, que nous utilisons dans le chapitre suivant pour mesurer les

facteurs de qualités expérimentaux. En posant la transformée de Fourier :

$$E(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^\infty E(t)\, e^{i\omega t} dt \tag{3.14}$$

le spectre de puissance $|E(\omega)|^2$ du mode résonant s'exprime, à partir de 3.12 :

$$|E(\omega)|^2 \propto \frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + (\omega_0/2Q)^2} \tag{3.15}$$

$|E(\omega)|^2$ a la forme d'une Lorenztienne centrée en ω_0 la fréquence de résonance du mode et de largeur à mi-hauteur $\Gamma = \omega_0/Q$. Le facteur de qualité est alors donné par :

$$Q = \frac{\omega_0}{\Gamma}$$

Si $Q >> 1$, cette dernière relation équivaut à :

$$Q = \frac{\lambda_0}{\Delta\lambda} \tag{3.16}$$

Le facteur de qualité d'un mode résonant peut donc être mesuré sur un spectre en calculant le rapport de la longueur d'onde du pic résonant sur sa largeur à mi-hauteur. Ainsi sur le spectre 3.7(c), le pic correspondant au mode TEy2 est situé à $\lambda_0 = 785\,\text{nm}$, sa largeur à mi-hauteur est $\Delta\lambda = 13\,\text{nm}$ et on calcule un facteur de qualité de $Q = \lambda_0/\Delta\lambda = 60$. De même, pour le mode TEx, situé à $\lambda_0 = 764\,\text{nm}$ et de largeur à mi-hauteur $\Delta\lambda = 32\,\text{nm}$, on calcule $Q = 24$. Ces valeurs sont proches de celles calculées via l'équation 3.13 dans la section précédente.

3.5 Conclusion

Nous avons caractérisé par AFM les structures photoniques fabriquées au LAAS, et calculé que ces structures présentent une bande interdite dans le domaine visible. Nous avons ensuite expliqué la méthode de FDTD nous permettant de déterminer théoriquement la position spectrale, la polarisation et le facteur de qualité d'un mode résonant de cavité. La structure simulée, une cavité modifiée de paramètre $r_0/a = 0,38$ ($a = 345\,\text{nm}$ et $r_0 = 130\,\text{nm}$ par exemple), présente quatre modes dont les distributions spatiales du champ électrique sont fortement localisées dans la cavité, situés entre 710 et 840 m : trois modes de polarisation y en champ lointain, excités en orientant la source dans la cavité suivant l'axe y ; et un mode de polarisation x en champ lointain, excité en orientant la source dans la cavité suivant l'axe x. Les facteurs de qualité de ces modes sont compris entre 20 et 70. Le chapitre suivant est consacré à l'étude expérimentale des résonances optiques de ces structures photoniques, que nous comparerons à des simulations effectuées par cette méthode de FDTD.

Chapitre 4

Etude optique d'une cavité de cristal photonique planaire

Les cavités de cristal photonique offrent la possibilité de confiner la lumière dans un volume de l'ordre de la longueur d'onde au cube, aux fréquences des modes résonants des cavités. Une première application d'une telle propriété est la possibilité d'observer un effet laser à des seuils bas. Une seconde application est d'utiliser ces cavités comme des résonateurs, afin d'obtenir un contrôle sur l'émission d'un émetteur positionné dans la cavité.

La réalisation d'un couplage optimal nécessite que l'émetteur et la cavité soient en accords spatial et spectral. Il est alors primordial de connaître avec précision la position en fréquence des modes résonants de la cavité, ainsi que la façon dont est distribué leur champ électrique. Le développement rapide depuis une dizaine d'années des techniques de fabrication permet d'obtenir des structures présentant des propriétés de plus en plus fidèles à celles prédites par les méthodes numériques. Cependant, ces techniques ne sont pas parfaites, et la caractérisation post-synthèse des propriétés optiques des cavités s'avère la plupart du temps indispensable.

Nous présentons dans ce chapitre une méthode de caractérisation originale, fondée sur l'étude spectrométrique de la lumière diffusée par les cavités. Cette méthode, développée au sein de l'équipe, permet une caractérisation complète des modes (fréquence, facteur de qualité, polarisation) et présente l'avantage d'être non intrusive.

Dans une première partie, nous faisons un inventaire des différentes techniques déjà existantes. Nous décrivons ensuite en détail le dispositif de spectroscopie de diffusion utilisé pour étudier les propriétés optiques des cavités, puis nous caractérisons les modes résonants d'une cavité. Nous terminons par une étude de l'influence de la géométrie de la cavité sur la fréquence et le facteur de qualité des modes.

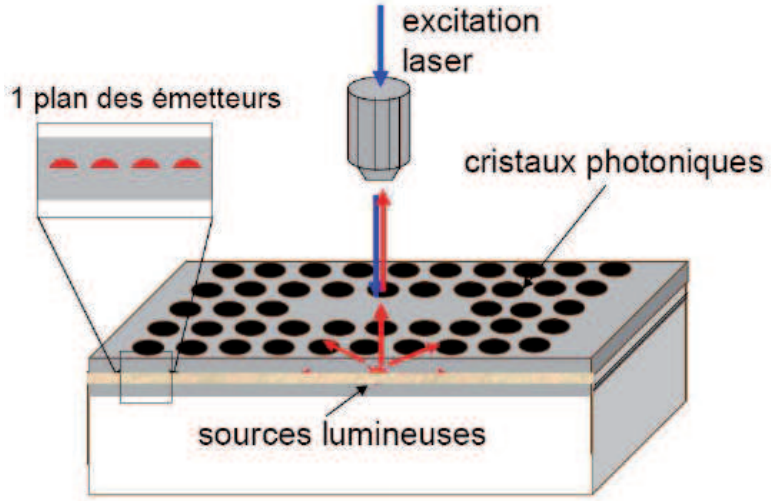

FIGURE 4.1 – Schéma illustrant le principe de la méthode de la source interne, emprunté à la référence [27].

4.1 Méthodes de caractérisation

Il existe diverses méthodes permettant de caractériser les modes résonants de cavités de cristal photonique. Nous décrivons brièvement le principe des méthodes les plus répandues.

4.1.1 Méthode de la source interne

Cette méthode, dont le principe est illustré sur le schéma 4.1 [27], a été développée par D. Labilloy en 1996 [111]. Elle consiste à inclure une couche d'émetteurs dans le matériau diélectrique où est gravé le motif du cristal photonique. Une fois excités, ces émetteurs se désexcitent de façon préférentielle aux fréquences des modes résonants, ce qui se traduit par des pics dans les spectres de photoluminescence de la cavité. L'analyse de ces pics permet de déterminer la fréquence, le facteur de qualité, et la polarisation des modes.

Deux types d'émetteurs sont généralement utilisés dans la littérature : les puits quantiques [92, 97, 106, 112] et les boîtes quantiques [90, 94, 96, 98], épitaxiés dans la structure lors de la fabrication du cristal photonique.

Cette méthode possède de nombreux avantages. Le spectre d'émission large des émetteurs permet de sonder efficacement les cavités sur une gamme spectrale étendue, pour peu que l'émission soit centrée correctement dans la bande interdite du cristal photonique. Si la concentration des émetteurs est élevée, la luminescence est importante ce qui permet un temps d'acquisition réduit. Au-delà de la caractérisation de cavités, de nombreux effets de couplage ont été mis en évidence comme l'émission préférentielle des émetteurs aux fréquences des modes de la cavité [106], la modification du temps de vie d'émetteurs uniques par effet Purcell [86, 113] et la mise en évidence d'effets laser [92, 114].

Différents émetteurs ont été utilisés en fonction de la bande interdite que présente le cristal

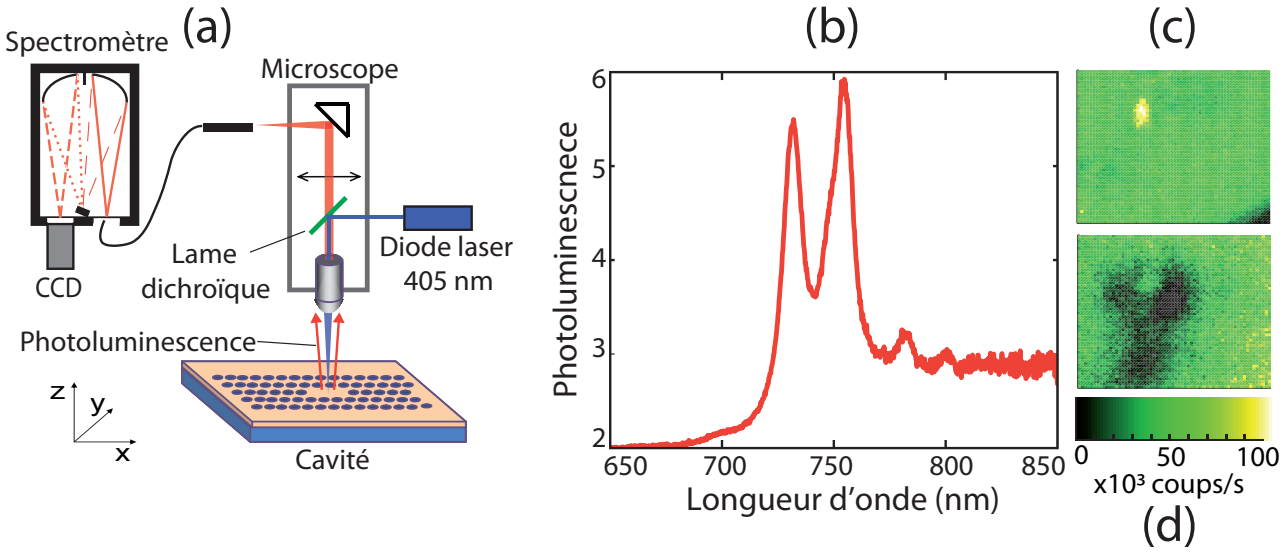

FIGURE 4.2 – (a) Dispositif de mesure par photoluminescence des modes résonant d'une cavité L3 paramètres $a = 345\,\text{nm}$, $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 100\,\text{nm}$. (b) Spectre de photoluminescence obtenu en excitant la cavité avec une diode laser à 405 nm. (c) et (d) Cartographies réalisées avec une photodiode de l'intensité lumineuse émise par la cavité (c) avant et (d) après la mesure.

photonique. Makarova *et al.* du DEE à l'université de Stanford [94] utilisent des nanocristaux de silicium dopés par des molécules d'Erbium pour caractériser des cavités S1 et L3 en nitrure de silicium dans l'infrarouge. Le groupe de E. Hu du DMECE à l'Université de Californie [90] et Chalcraft *et al.* du DPA à l'Université de Sheffield [102] caractérisent des cavités dans l'infrarouge avec des boîtes quantiques d'InAs. Le groupe de D. Bensahel de l'IEF à l'Université d'Orsay [98, 101] se sert de boîtes quantiques en germanium pour des cavités dans l'infrarouge. Le groupe de de Vittorio du NNL à l'Université de Salento [96] utilise des nanocristaux de CdSe/CdS pour caractériser des cavités dans le visible.

L'inclusion d'une couche d'émetteurs dans la structure modifie l'environnement de la cavité, de façon en général non réversible. Ainsi, pour une expérience de couplage de la cavité à un fluorophore individuel, l'addition d'une couche d'émetteurs fluorescents est impossible. Toutefois, il est à noter que des expériences de couplages entre une cavité et un faible nombre d'émetteurs inclus dans la cavité lors du procédé de fabrication (de deux [86] à quatre [85] émetteurs dans la cavité) ont été réalisées avec succès.

4.2 Utilisation de la luminescence intrinsèque

Cette méthode diffère de la méthode décrite précédemment dans le sens où la source de luminescence ne provient pas d'une couche d'émetteurs ajoutés intentionnellement, mais d'impuretés incluses dans le matériau [115–117]. Les modes sont alors identifiés grâce aux pics présents dans le spectre de photoluminescence.

Cette technique présente l'intérêt d'être simple à mettre en œuvre. De plus, il est possible

de sonder la cavité en son centre, donc là où le couplage avec la cavité et les émetteurs est maximal. Nous illustrons cela par une mesure de photoluminescence d'une de nos cavités en nitrure de silicium, de paramètres $a = 345\,\text{nm}$, $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 100\,\text{nm}$. La figure 4.2(a) est un schéma du dispositif de photoluminescence utilisé. La cavité est pompée par une diode laser à 405 nm et la luminescence du nitrure de silicium est collectée par un microscope couplé à un spectromètre. Pour une puissance de pompe de 1 mW et un temps d'acquisition de 5 min, on obtient le spectre de la figure 4.2(b), où les pics correspondent aux modes résonants de la cavité. La coupure à 700 nm correspond à l'utilisation d'un miroir dichroïque pour isoler la raie du laser et préserver les photodiodes.

Cette technique permet donc d'effectuer une caractérisation des modes résonants d'une cavité de façon relativement aisée. Elle s'accompagne cependant d'un désavantage considérable : pour une puissance d'excitation importante, la dégradation de la cavité ou du moins des impuretés luminescentes dans la cavité semble inévitable. En effet, les figures 4.2(c) et (d) représentent une cartographie de l'intensité émise par photoluminescence de la cavité avant et après la mesure du spectre 4.2(b) (la cartographie est réalisée à l'aide d'une photodiode et d'un module piezoélectrique). Avant la mesure du spectre, sur la figure 4.2(c), le nombre de photons par seconde émis par la cavité (jaune) est trois fois plus important que celui du cristal entourant la cavité (vert). Après la mesure du spectre, sur la figure 4.2(d), le nombre de photons par seconde émis par la cavité (noir) est de l'ordre du fond expérimental.

La zone que nous avons excitée a donc photoblanchi. Notons que d'après nos observations, cet état est irréversible. Pourtant, s'il est clair que les éléments photoluminescents du nitrure de silicium ont été affectés, nous ne sommes pas en mesure d'affirmer que la cavité ait réellement été dégradée. Cependant, les auteurs de la référence [117] sondent avec cette technique une cavité de cristal photonique et montrent que le facteur de qualité du mode excité diminue de 40%, et est décalé en fréquence de près de 3 nm après une excitation intense de plusieurs minutes (précisons que le décalage du mode était l'effet recherché, afin d'obtenir un couplage spectral idéal entre l'émetteur et le mode résonant). Cette technique de caractérisation semble donc avoir un effet sur les modes de cavités, ce que nous cherchons à éviter.

4.3 Couplage évanescent à un guide d'onde

Une autre méthode consiste à inclure un guide d'onde à proximité de la cavité lors de la réalisation de la structure photonique [83, 84, 105, 118–122]. La lumière guidée par le guide d'onde se couple à la cavité si sa fréquence correspond à un de ses modes résonants, ce qui est mis en évidence par un spectre de photoluminescence de la cavité. Cette méthode a été expérimentée pour la première fois par l'équipe de Noda du DESE à l'Université de Kyoto en 2000 pour encore une fois mettre en évidence un effet laser dans une cavité H1 [118]. La même équipe a par la suite utilisé cette méthode pour mesurer des facteurs de qualité records de 10^6.

Avec cette technique, le facteur de qualité de la cavité est déterminé de façon indirecte. En effet, le facteur de qualité mesuré sur le spectre de photoluminescence est corrélé à l'efficacité de couplage entre la cavité et le guide. Ainsi, on a le facteur de qualité de la cavité $Q_{cav} = Q_{exp}/\sqrt{T}$ où Q_{exp} est le facteur de qualité mesuré expérimentalement et T la transmittance définie comme

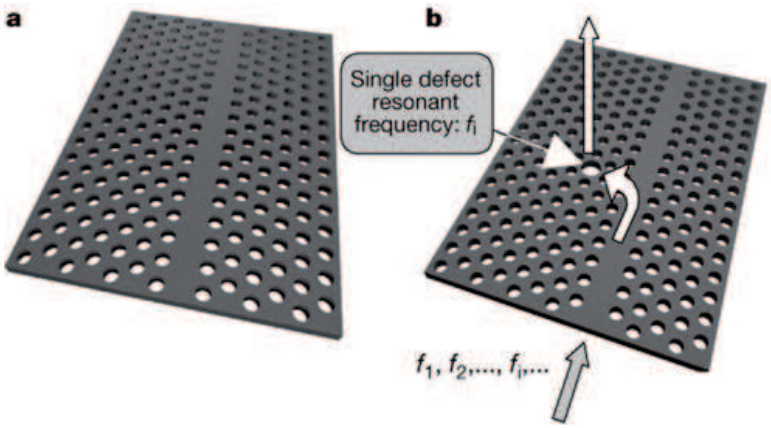

FIGURE 4.3 – Schéma illustrant le principe de la méthode du couplage évanscent à un guide d'onde, emprunté à la référence [118].

le rapport entre l'énergie transmise par le guide à proximité de la cavité et l'énergie transmise par le cavité en l'absence de la cavité. Une explication détaillée sur l'origine de cette formule est donnée dans l'appendice de la référence [84]. La détermination du facteur de qualité de la cavité nécessite donc de réaliser un échantillon témoin supplémentaire.

Cependant, cette méthode est difficile à mettre en œuvre. La réalisation d'un guide d'onde autorisant un couplage évanescent efficace avec la cavité est un défi technique. Les sources utilisées dans les références citées plus haut sont des lasers accordables, et l'alignement de la source avec le guide d'onde et les problèmes vibrationnels qui s'ensuivent sont des problèmes ardus. Enfin, la détermination du facteur de qualité nécessite de réaliser un échantillon témoin afin de déterminer la transmittance du guide en l'absence de cavité.

Enfin, nous soulignons comme pour la méthode de la source interne que l'ajout d'un guide modifie l'environnement de la cavité, et certainement plus sévèrement qu'avec la méthode précédente, le guide ajoutant un canal de fuite supplémentaire.

4.4 Rétro-réflexion en polarisation croisée

Cette méthode consiste à exciter les modes résonants de la cavité à l'aide d'un faisceau d'incidence verticale. La source utilisée peut être un laser accordable [123, 124] mais peut aussi être une source large comme une lampe halogène [89, 113]. Un spectre est alors mesuré en transmission [124] ou en réflexion [89, 123], et l'utilisation de deux polariseurs croisés (orienté à 45° de l'axe long de la cavité, dans le cas d'une cavité L3) permet de réduire sensiblement le rapport signal à bruit de la mesure. Galli *et al.* [123] du DF de l'Université de Pavia parviennent ainsi à mesurer des facteurs de qualité atteignant 1.1×10^5 dans l'infrarouge.

Cette méthode est très prometteuse en tant que technique de fond sombre et non invasive, puisqu'elle permet une mesure directe du facteur de qualité, sans ajouter de fluorophores ou de guides d'onde. Pourtant, elle semble limitée dans le sens où elle ne permet pas d'analyse en polarisation des modes, ce qui peut s'avérer crucial dans le cas de modes quasi dégénérés en

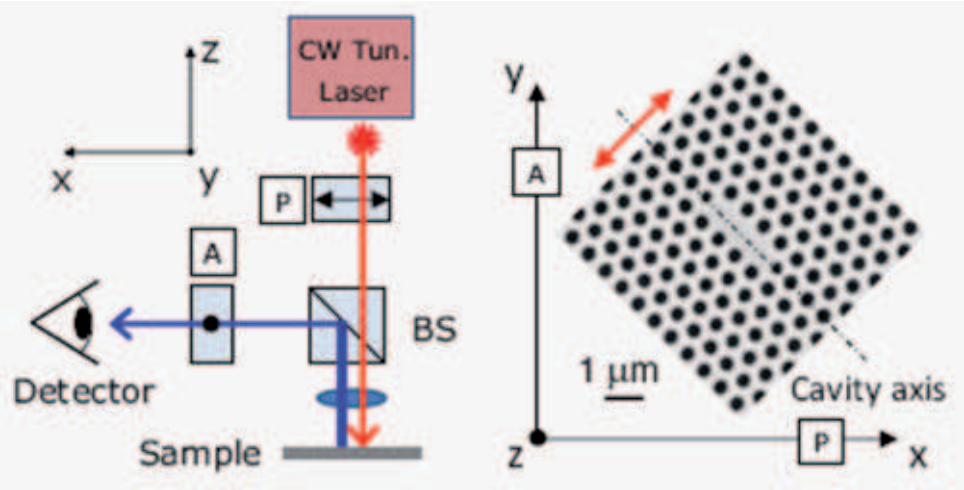

Figure 4.4 – Schéma illustrant le principe de la méthode de rétro-réflexion en polarisation croisée, empruntée à la référence [123].

longueur d'onde mais de polarisations différentes.

Cette dernière méthode est celle se rapprochant le plus de celle que nous avons développée au sein de l'équipe. La description de cette technique originale fait l'objet de la section suivante.

4.5 Dispositif expérimental

4.5.1 Description du dispositif

Le dispositif expérimental est schématisé sur la figure 4.5(a). Il consiste à injecter par la tranche de l'échantillon une lumière blanche, puis à collecter la lumière diffusée par les structures photoniques avec un dispositif de microscopie confocale. Une photodiode détecte la quantité de lumière diffusée, qui varie suivant la structure (surface plane, cristal, cavité), et un système piézo-électrique permet de cartographier l'échantillon et de le placer de façon à collecter la lumière provenant de la cavité. Un spectre de diffusion est alors mesuré par un spectromètre couplé à une fibre. Chacune de ces étapes est décrite en détails dans les sections suivantes.

Illumination de l'échantillon

L'échantillon est placé sur la platine d'un microscope inversé Olympus IX71 et est illuminé par une lampe halogène fibrée Edmund Optics MI-150. Un spectre de la lampe, mesuré en illuminant directement la fente du spectromètre, est présenté dans la figure 4.5(b). La puissance mesurée en sortie de fibre est de 35 mW et l'ouverture numérique de la fibre de la lampe est de 0,5. L'échantillon est placé le plus près possible de la sortie de fibre, à 0,5 cm dans notre dispositif.

La lumière est injectée dans l'échantillon par la tranche, c'est-à-dire que la lumière se propage parallèlement au plan du cristal photonique. Elle est ainsi guidée par la couche diélectrique et diffusée par les structures photoniques, où nous la collectons puis l'analysons. Nous estimons à environ 2,0 μW la puissance injectée dans la couche guidante.

Collection de la lumière diffusée

La lumière diffusée par les structures photoniques est collectée par un objectif à air de grossissement 100 et d'ouverture numérique 0,95. Un polariseur est éventuellement placé après l'objectif, parallèle (axe x) ou perpendiculaire (axe y) à l'axe de la cavité. La lumière est ensuite filtrée par un trou de filtrage spatial de diamètre 150 μm placé dans le plan image du microscope, permettant ainsi la sélection d'une zone de détection circulaire de 1,5 μm de diamètre sur l'échantillon.

Enfin, le faisceau est séparé par un cube non polarisant 50/50 puis envoyé vers une photodiode à avalanche SPCM-AQR 14 PerkinElmer [1] utilisée pour le positionnement de l'échantillon, et une fibre LUV Jobin Yvon reliée à un spectromètre Jobin Yvon HR460 de résolution 1 nm et une caméra CCD (Charge-Coupled Device) de 2000 pixels, utilisés pour la mesure.

Le spectre de transmission de notre système optique est présenté sur la figure 4.5(c). Il a été obtenu en divisant le spectre de la lampe mesuré à travers tout le dispositif (objectif, microscope, fibre vers le spectromètre) par le spectre de la lampe mesuré directement à travers la

1. Il n'est pas nécessaire d'utiliser une photodiode aussi sensible. Nous utilisons ce modèle car il sert également pour d'autres activités de l'équipe, comme des mesures de temps de vie de nanocristaux.

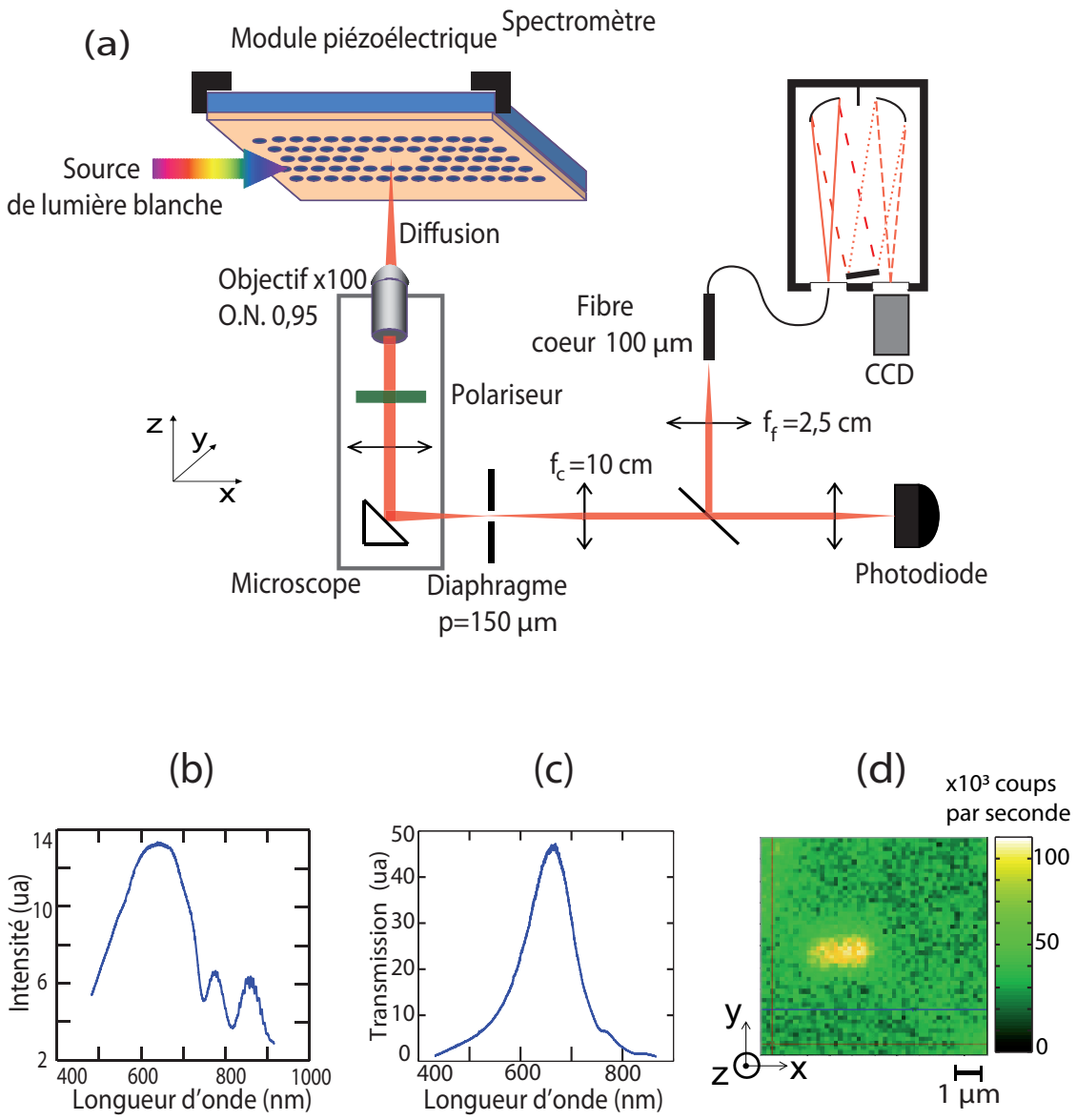

FIGURE 4.5 – (a) Dispositif expérimental. La lumière est envoyée par la tranche de l'échantillon et la lumière diffusée par la cavité est collectée par un dispositif de microscopie confocale. Le positionnement est réalisé grâce à une photodiode et un module piézoélectrique. Le signal collecté est analysé par un spectromètre et une caméra CCD reliés au dispositif par une fibre optique.(b) Spectre de la lampe halogène. (c) Spectre de transmission du microscope, sans polariseur. (d) Cartographie d'une cavité par la photodiode.

fente du spectromètre (spectre de la figure 4.5(b)). Nous disposons d'une fenêtre de transmission s'étendant de 450 nm à 850 nm, avec une transmission maximale vers 650 nm et une transmission très faible pour les longueurs d'onde supérieures à 800 nm causée par les optiques du microscope (prisme de renvoi et lentille de tube).

Positionnement de l'échantillon

L'échantillon est monté sur un actuateur piézo-électrique qui permet dans un premier temps de cartographier la lumière diffusée par la cavité et détectée par la photodiode, en effectuant un balayage de l'échantillon au dessus de l'objectif pouvant aller jusqu'à 15x15 μm^2.

La figure 4.5(d) montre la cartographie d'une cavité. Le balayage est de $10 \times 10\,\mu$m, avec une grille de 63×63 points, chaque pixel mesurant 160 nm. On observe que la cavité diffuse plus de lumière que le cristal, avec environ 10^5 photons par seconde collectés par la photodiode (protégée par une densité 3) au-dessus de la cavité, contre 10^4 au-dessus du cristal. Enfin, en sélectionnant un point de la cartographie obtenue, le système piezo-électrique déplace l'échantillon de façon à confondre le point sélectionné et le centre de la zone de détection définie par le trou de filtrage. Un spectre de la lumière diffusée est alors mesuré.

4.5.2 Spectromètre et couplage à la fibre

La fibre couplée au spectromètre est une monofibre de $100\,\mu$m de cœur et d'ouverture numérique 0.22 (demi-angle d'ouverture d'environ 13°), fixée en sortie sur une monture proposée par Jobin Yvon permettant un couplage optimal entre la fibre et la fente. La puissance du signal détecté est donc principalement fonction de la qualité du couplage à l'entrée de la fibre. Les optiques sont choisies de façon à permettre d'injecter la totalité du signal dans la fibre :

- taille x de la tache focalisée sur l'entrée de la fibre inférieure au diamètre du cœur de la fibre : $x = p \times f_f/f_c$ où p, f_f et f_c sont respectivement le diamètre du trou de filtrage, la focale de la lentille de focalisation et celle de la lentille de collimation (voir schéma 4.5(a)). Pour un trou de filtrage de $150\,\mu$m de diamètre, la tache à l'entrée de la fibre mesure $37.5\,\mu$m.
- ouverture numérique du faisceau focalisé sur l'entrée de la fibre inférieure à l'ouverture numérique de la fibre : l'ouverture numérique de l'objectif vaut $ON = 0,95$ et on a l'angle α du faisceau au trou de filtrage : $\alpha = (\arcsin(ON))/100$. L'ouverture numérique β du faisceau focalisé à l'entrée de la fibre est alors donnée par la relation : $\beta = \alpha\, f_c \,/\, f_f \approx 0,05$ soit un demi-angle d'ouverture de 3°.

La mesure de la puissance avant et après couplage à la fibre du faisceau d'une diode laser à 633 nm effectuant tout le trajet du dispositif nous indique une transmission de 71%, contre 95% pour la valeur constructeur. Nous attribuons cet écart à l'imperfection des réglages optiques.

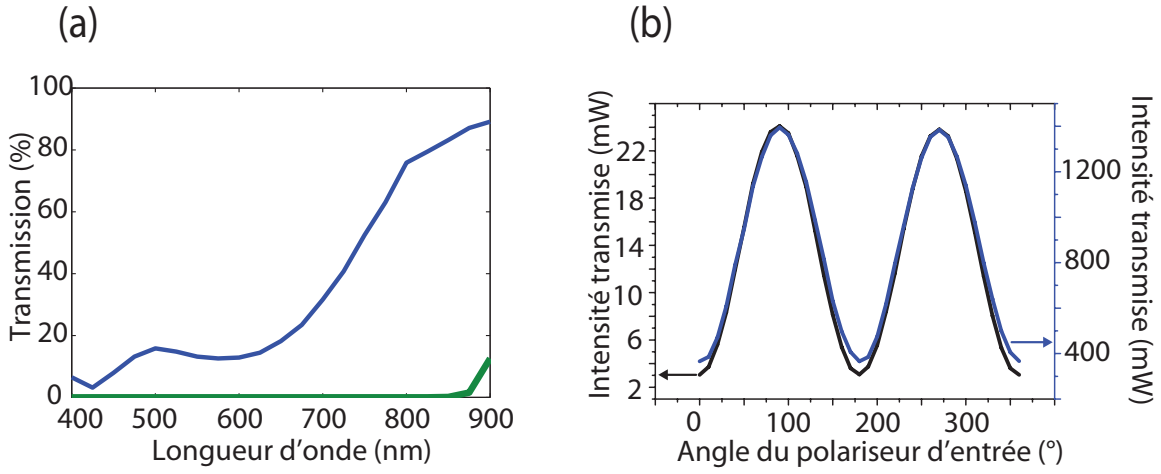

Figure 4.6 – (a) Transmission du polariseur HN7. En bleu la transmission maximale à travers une seule feuille, en vert la transmission à travers deux feuilles orientés à 90° l'une par rapport à l'autre. (b) Réponse en polarisation de l'objectif. La courbe noire représente l'intensité de la lampe halogène transmise à travers l'objectif avec un polariseur et un analyseur. La courbe bleue représente la même mesure sans l'objectif.

4.5.3 Réponse en polarisation du dispositif

Pour l'analyse en polarisation, nous utilisons un polariseur HN7. Les courbes de transmission à travers un film polariseur de polarisation rectiligne (dans le même sens que le polariseur), et à travers deux films polariseurs croisés sont représentées dans la figure 4.6a, en bleu et vert respectivement. La transmission à travers un polariseur entre 700 et 850 nm, où sont situés la majorité des modes résonants de nos cavités d'après nos simulations, augmente de 20 à 80%. La transmission à travers deux polariseurs croisés est de l'ordre de 10^{-4} % jusqu'à 860 nm. Les polariseurs HN7 sont donc bien adaptés à notre étude.

Afin de s'assurer que le système optique (objectif et microscope) n'influe pas sur la polarisation du signal, nous avons caractérisé son comportement en polarisation :

- Objectif : la figure 4.6b représente la puissance lumineuse de notre lampe halogène transmise à travers l'objectif placé entre 2 polariseurs, pour différents angles du polariseur placé entre l'objectif et la source (courbe noire), et la même mesure sans objectif (courbe bleue). Les formes des deux courbes sont identiques (après mise à l'échelle adéquate), avec une intensité maximale lorsque les polariseurs sont parallèles et minimale lorsqu'ils sont orthogonaux, et montrent que la polarisation de la lumière n'est pas modifiée par son passage dans l'objectif.
- Microscope : Pour vérifier le comportement en polarisation du microscope (comprenant la lentille de tube et le prisme de renvoi), nous avons mesuré des spectres de notre lampe halogène avec un polariseur placé sur le trajet du faisceau avant son entrée dans l'objectif, et un analyseur après sa sortie du microscope (voir schéma 4.6(a)). Les figures 4.7(b) et (c) représentent les spectres mesurés avec le polariseur orienté respectivement suivant

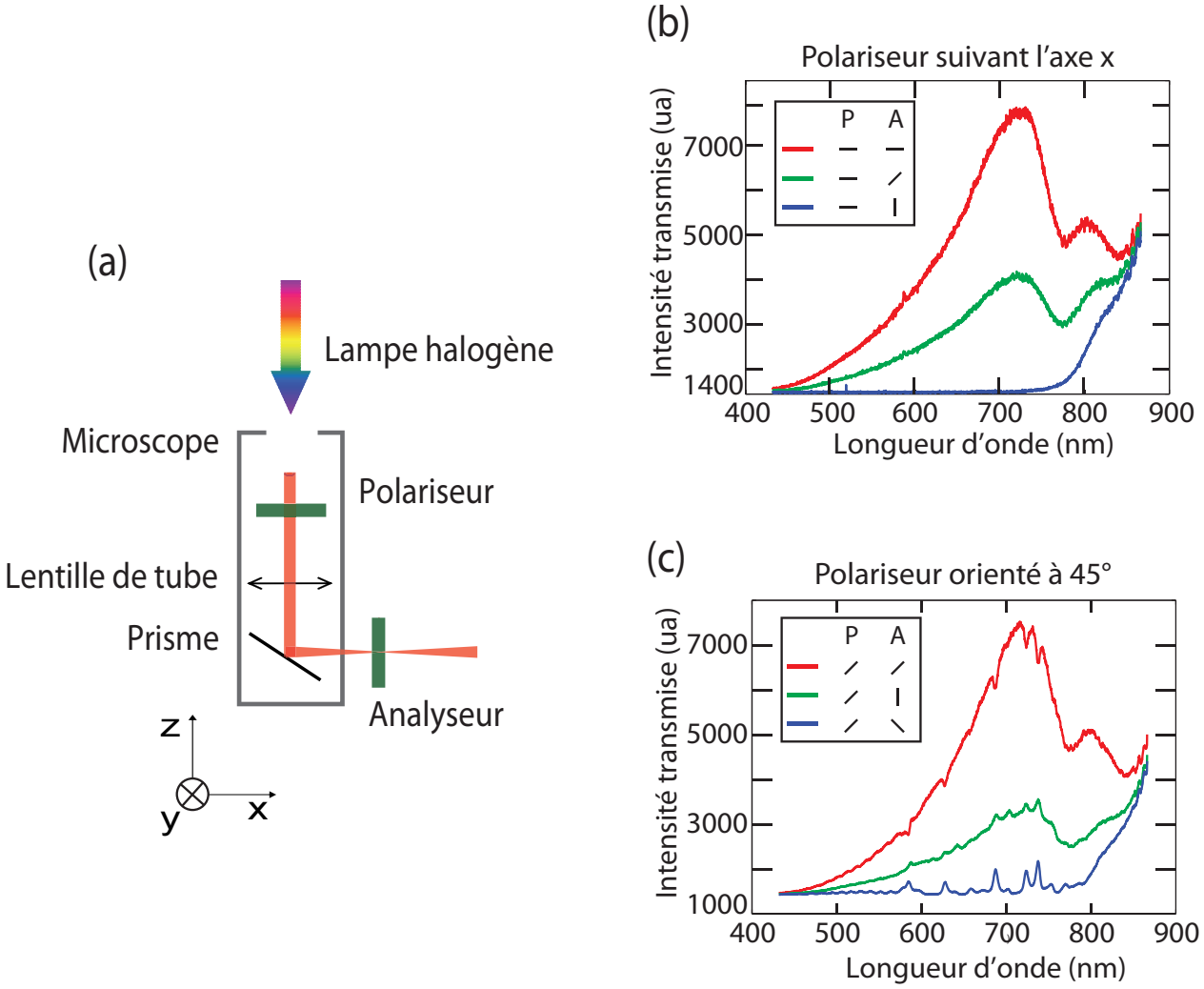

FIGURE 4.7 – Caractérisation du comportement en polarisation du microscope. (a) Dispositif de la mesure, avec un polariseur placé avant le microscope et un analyseur après. (b) Spectres mesurés pour différents angles de l'analyseur, avec le polariseur orienté suivant l'axe x. (c) Spectres mesurés pour différents angles de l'analyseur, avec le polariseur orienté à 45° par rapport à l'axe x. On observe des pics régulièrement espacés correspondant à la rotation de la polarisation.

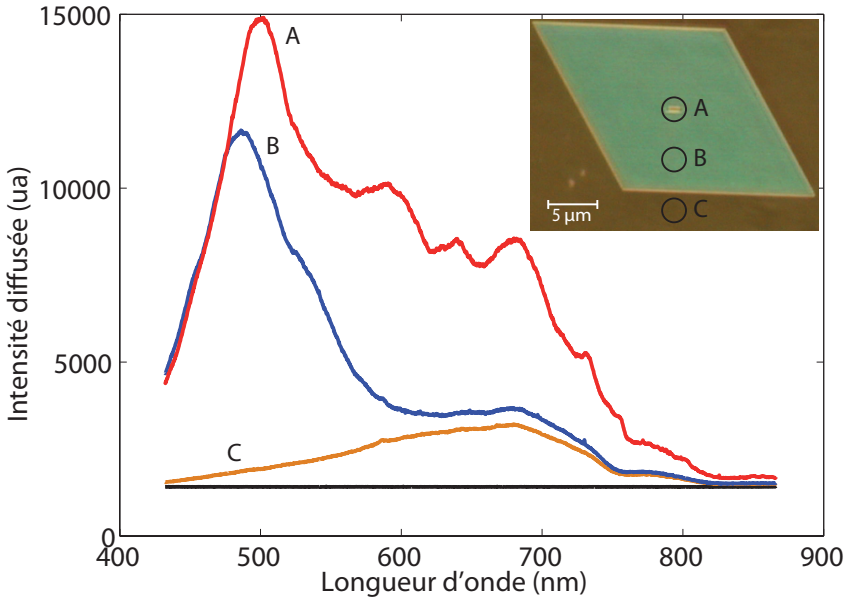

FIGURE 4.8 – Spectres de diffusion de la couche plane de nitrure de silicium (C), des trous du cristal photonique (B) et de la cavité (A). La courbe noire correspond à une mesure effectuée avec les fentes du spectromètre fermées. Les paramètres de la structure sont $r_0 = 130\,\text{nm}$, $r_1 = 100\,\text{nm}$ et $s = 0$. La photographie en encart montre la structure et les différentes zones sondées.

l'axe x et à 45° par rapport à l'axe x, les axes x et y étant les axes privilégiés du microscope. L'analyseur est orienté suivant trois angles : parallèle, à 45° et perpendiculaire au polariseur.
Pour les deux orientations du polariseur (suivant l'axe x et à 45°), le comportement en intensité est celui attendu, avec une intensité transmise maximale lorsque les polariseurs sont alignés et nulle (intensité du fond électronique à 1400) lorsqu'ils sont orthogonaux. En revanche, sur les spectres de la figure 4.7(c) lorsque le polariseur est placé à 45° par rapport à l'axe x (polarisation répartie suivant les deux axes x et y), on observe des pics régulièrement espacés correspondant au changement de la polarisation provoqué par la surface diélectrique du prisme.
La polarisation ne tourne pas si le polariseur d'entrée est positionné suivant l'axe x ou y. Pour s'affranchir de cet effet, nous placerons le polariseur d'analyse directement après l'objectif.

4.6 Protocole

4.6.1 Spectres de diffusion

La photographie présentée en encart de la figure 4.8 présente une structure photonique (paramètres $r_0 = 130\,\text{nm}$, $r_1 = 100\,\text{nm}$ et $s = 0$) observée à travers un objectif à grossissement

100 et éclairée par la tranche, la lumière venant de la droite. Cette photographie a été prise sur un microscope Olympus BX-51 appartenant à l'équipe « Milieux dilués multi-échelles »de Jacques Lafait à l'INSP.

On distingue trois régions : le cristal photonique, qui diffuse une couleur bleue ; au centre du cristal la cavité, dont les bords diffusent une couleur jaune (comme les bords du cristal) ; et autour du cristal la surface plane de nitrure de silicium, qui diffuse une couleur marron.

Les spectres de diffusion mesurés par notre dispositif sur ces trois régions sont présentés figure 4.8. Les courbes C, B et A représentent respectivement des spectres de la lumière diffusée par la zone plane, le cristal photonique, et la cavité, les limites de chaque zone d'observation étant représentées par des cercles sur la photographie en encart.

Les paramètres d'acquisition de ces spectres et tous ceux à venir sont les suivants :

- orientation du réseau du spectromètre par rapport à la CCD positionnée de façon à mesurer des spectres de 430 nm à 860 nm,
- ouverture de la fente d'entrée du spectromètre de 2 mm,
- temps d'acquisition de 5 minutes.

La courbe noire correspond au fond électronique du dispositif, mesuré avec la fente du spectromètre fermée.

En accord avec les différentes couleurs observées sur la photographie, chaque zone montre un comportement spectral différent. Le spectre diffusé par la zone plane augmente avec la longueur d'onde jusqu'à 700 nm puis diminue. Le nitrure de silicium est non absorbant dans cette gamme de longueur d'onde et on retrouve une forme comparable au spectre de la source halogène mesuré après avoir traversé le microscope (spectre non montré). A l'opposé, l'intensité diffusée par le cristal est beaucoup plus importante en-dessous de 500 nm. Enfin le spectre diffusé par la cavité est très intense de 500 nm à 700 nm, avec un pic d'intensité large à 500 nm et des bosses entre 500 et 700 nm. On observe aussi de petites bosses entre 700 et 800 nm.

4.6.2 Normalisation

Afin de ne traiter que de la diffusion provenant des structures photoniques, tous les spectres que nous analyserons dans les sections suivantes seront normalisés par des spectres de diffusion de la surface plane de nitrure de silicium, après soustraction du fond électronique.

Comparons les spectres mesurés en différents points de la surface plane de nitrure de silicium. La figure 4.9(a) est une photographie de l'échantillon, chaque losange correspondant à un réseau de trous au centre duquel se trouve une cavité. Lors des mesures des spectres de diffusion, les cavités sont illuminées par la droite. Les différentes lettres correspondent aux zones où les spectres des figures 4.9(b) et (c) sont mesurés. Ces figures représentent des spectres de diffusion de la surface plane de nitrure de silicium mesurés à différents points de l'échantillon : des points s'éloignant progressivement de la source en x sur la figure 4.9(b) (points espacés d'environ 200 μm) et des points éloignés de la même distance de la source, mais à des positions transverses y différentes sur la figure 4.9(c) (points espacés d'environ 40 μm).

On observe que si la forme des spectres reste comparable, l'intensité diffusée diminue sen-

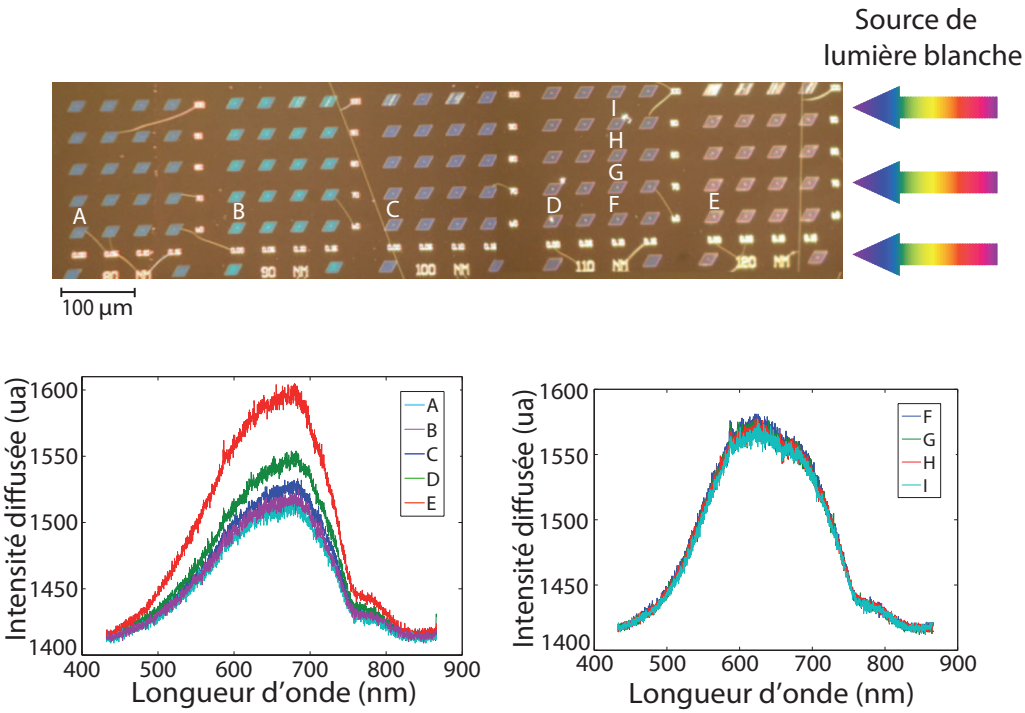

FIGURE 4.9 – (a) Photographie de l'échantillon. Chaque losange est un cristal photonique, au centre duquel se trouve une cavité. Les lettres désignent les points de la surface où ont été mesurés les spectres des figures (b) et (c). (b) Les points où les spectres sont mesurés s'éloignent progressivement de la source et sont espacés d'environ 200 μm. (c) Les points sont situés à la même distance de la source, mais à des positions transverses différentes et espacés d'environ 40 μm.

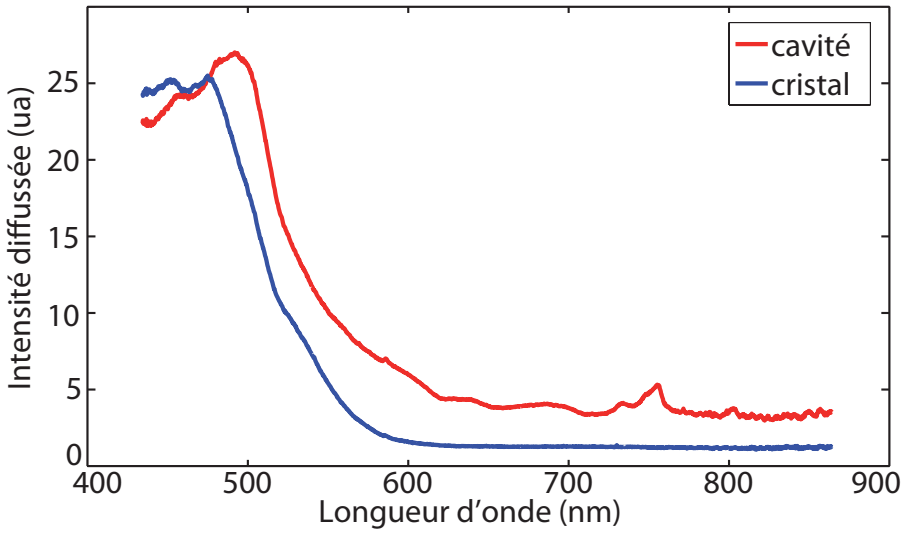

FIGURE 4.10 – Spectres normalisés de la diffusion des trous du cristal phtonique (bleu) et de la cavité (rouge). Les paramètres de la structure sont $a = 345\,\text{nm}$, $r_0 = 130\,\text{nm}$, $r_1 = 100\,\text{nm}$ et $s = 0$.

siblement en s'éloignant de la source. En revanche, nous considérons qu'elle varie de façon négligeable en fonction de la position transverse y du point de mesure. Par conséquent, lorsque je comparerai des spectres de diffusion de structures photoniques dans les sections suivantes, ces spectres seront normalisés par le même spectre de diffusion du nitrure de silicium si les structures sont situées à même distance x de la source, mais par des spectres de diffusion du nitrure de silicium différents si les structures sont situées à des distances différentes.

4.6.3 Traitement des courbes

Enfin, tous les spectres présentés dans la suite de cette thèse sont traités numériquement à l'aide de programmes MATLAB pour :

- supprimer les raies très étroites sur un à deux pixels correspondant à la détection des rayonnements cosmiques, en repérant les discontinuités de la dérivée du spectre.
- lisser les courbes, en remplaçant la valeur d'un point par la moyenne d'un paquet de points. Les spectres de diffusion de la surface plane de nitrure de silicium ne présentant pas de structures spectrales fines, ils ne nécessitent pas une bonne résolution en longueur d'onde et la moyenne est effectuée sur vingt points consécutifs. Les spectres de diffusion des cavités ne sont pas lissés, afin de préserver la résolution spectrale.

4.6.4 Spectres normalisés

Les spectres de diffusion du cristal photonique et de la cavité de la fig. 4.8 sont présentés après normalisation figure 4.10. Le spectre normalisé de la diffusion du cristal reste très intense en dessous de 500 nm, et décroît rapidement ensuite. L'interprétation de ce spectre fait l'objet de la section suivante. Le spectre normalisé de la diffusion de la cavité reste similaire à celui du cristal en dessous de 700 nm, mais à présent des pics ressortent plus nettement après 700 m par

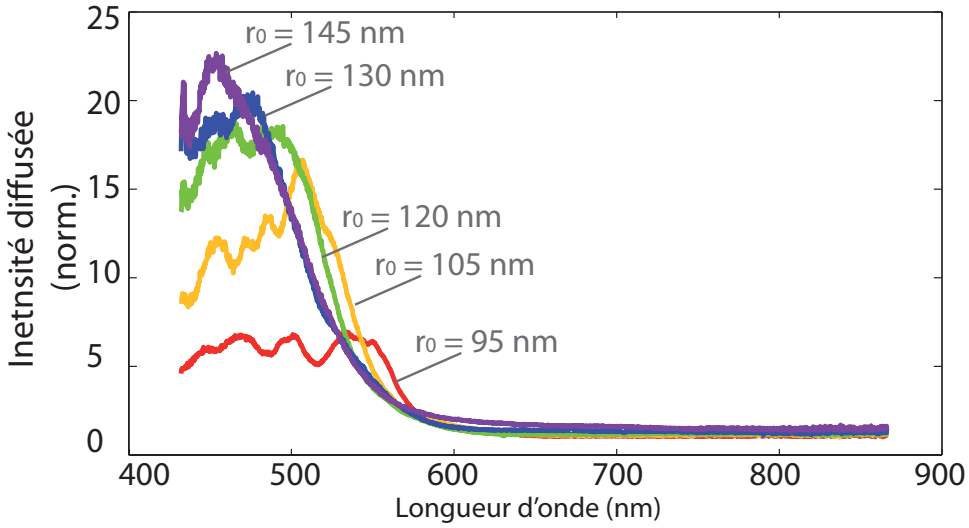

FIGURE 4.11 – Spectres normalisés de la diffusion par les trous de cristaux photoniques de période $a = 345\,\text{nm}$ et de rayons des trous $r_0 = 95$ (rouge), 105 (jaune), 120 (vert), 130 (bleu) et 145 nm (violet).

rapport au reste du spectre. Ces pics seront analysés dans la section 4.8.2 et seront attribués aux modes résonants de la cavité.

4.7 Spectres diffusés par le cristal photonique

Dans cette section nous discutons du spectre de la lumière diffusée par les trous du cristal photonique présenté sur la figure 4.10, en bleu. Nous traçons sur la figure 4.11 les spectres de diffusion expérimentaux de cinq cristaux photoniques, de même période des trous $a = 345\,\text{nm}$ mais de rayons r_0 différents. Pour toutes les courbes, on observe une coupure de l'intensité entre 500 et 580 nm, l'intensité diffusée étant très forte pour les longueurs d'onde plus basses que la coupure et très faible pour les longueurs d'onde plus élevées. A mesure que r_0 augmente, la coupure se décale vers les basses longueurs d'onde, et l'intensité diffusée est d'autant plus importante que le pic diffusé est bas en longueur d'onde.

Bien qu'elle dépende du rayon des trous r_0, la position de cette coupure ne doit pas être confondue avec le bord de la bande interdite de plus haute énergie du cristal photonique. Nous illustrons cela avec des simulations par FDTD d'un cristal photonique (sans cavité).

Tout d'abord, nous calculons la transmission du cristal photonique en plaçant une source sur le côté d'un cristal photonique constitué de 9×7 trous, et en mesurant le flux de l'autre côté du cristal (géométrie de la simulation schématisée en encart de la figure 4.12(a)). Les spectres calculés pour différentes valeurs de r_0 sont tracés sur la figure 4.12(a). Aux longueurs d'onde élevées, la transmission varie peu et est de l'ordre de l'unité. A ces longueurs d'onde, la quasi totalité de la lumière est transmise et le milieu peut-être considéré comme un milieu homogène.

Entre 800 et 950 nm, on observe des minima de transmission qui correspondent aux bandes

interdites photoniques. A mesure que le rayon des trous du cristal r_0 augmente, la bande interdite s'élargit et se décale vers les basses longueurs d'onde, en accord avec le calcul de l'évolution des bandes interdites de la figure 3.4(c) présentée dans le chapitre précédent. On observe également des minima de transmission aux longueurs d'onde plus basses, que nous attribuons à des bandes interdites d'ordres élevés.

Nous calculons à présent le spectre de la lumière diffusée au-dessus du cristal photonique lorsque la lumière est injectée par le côté du cristal (figures 4.12(b) et (c)), ce qui correspond à la quantité mesurée expérimentalement sur la figure 4.10 (en bleu). La lumière diffusée par les trous du cristal dépend de deux facteurs : la transmission à travers le cristal photonique et la diffusion par sa surface, le comportement de ces deux facteurs étant différents.

Nous considérons en premier lieu la lumière diffusée après avoir traversé trois rangées de trous (voir figure 4.12(b), géométrie de la simulation en encart). L'intensité diffusée est forte aux basses longueurs d'onde et d'autant plus importante que le rayon des trous r_0 est large. On observe une coupure de l'intensité entre 400 et 500 nm, qui se décale à mesure que r_0 augmente. Cette coupure n'est pas située au bord de plus haute énergie des bandes interdites mises en évidence sur les spectres de transmission simulés de la figure 4.12(a). Ainsi, la diffusion par la surface du cristal photonique est dominante.

Nous considérons à présent les spectres de la lumière diffusée après avoir traversé quinze rangées de trous dans un cristal constitué de 17×5 trous (voir figure 4.12(c), géométrie de la simulation en encart). On observe des minima de l'intensité diffusée situés aux mêmes longueurs d'onde que les minima de l'intensité transmise des spectres de la figure 4.12(a). Par exemple pour $r_0 = 120\,\mathrm{nm}$ (courbes bleues), le minimum à 500 nm de l'intensité diffusée sur la figure 4.12(c) s'explique par la transmission minimale à la même longueur d'onde sur la figure 4.12(a). Ainsi, la transmission à travers le cristal est le facteur limitant.

Les spectres de diffusion expérimentaux de la figure 4.11 et leur dépendance en r_0 sont en bon accord qualitatif avec les spectres simulés de la figure 4.12, pour lequel la diffusion par la surface du cristal est dominante, ce qui suggère que c'est le facteur qui explique l'allure de nos courbes expérimentales. Cependant, les longueurs d'onde des coupures de l'intensité diffusée observées pour différentes rayons r_0 sont plus élevées d'environ 50 nm comparées aux valeurs calculées. La diffusion est particulièrement sensible à la rugosité de surface expérimentale, non incluse dans le modèle.

La région des spectres expérimentaux aux basses longueurs d'onde est bien décrite par les simulations numériques et permet de comprendre les mécanismes de diffusion de la lumière à travers la structure. Dans la section suivante, nous étudions la région aux longueurs d'onde élevées, où nous caractérisons les modes résonants par les spectres de diffusion de la cavité.

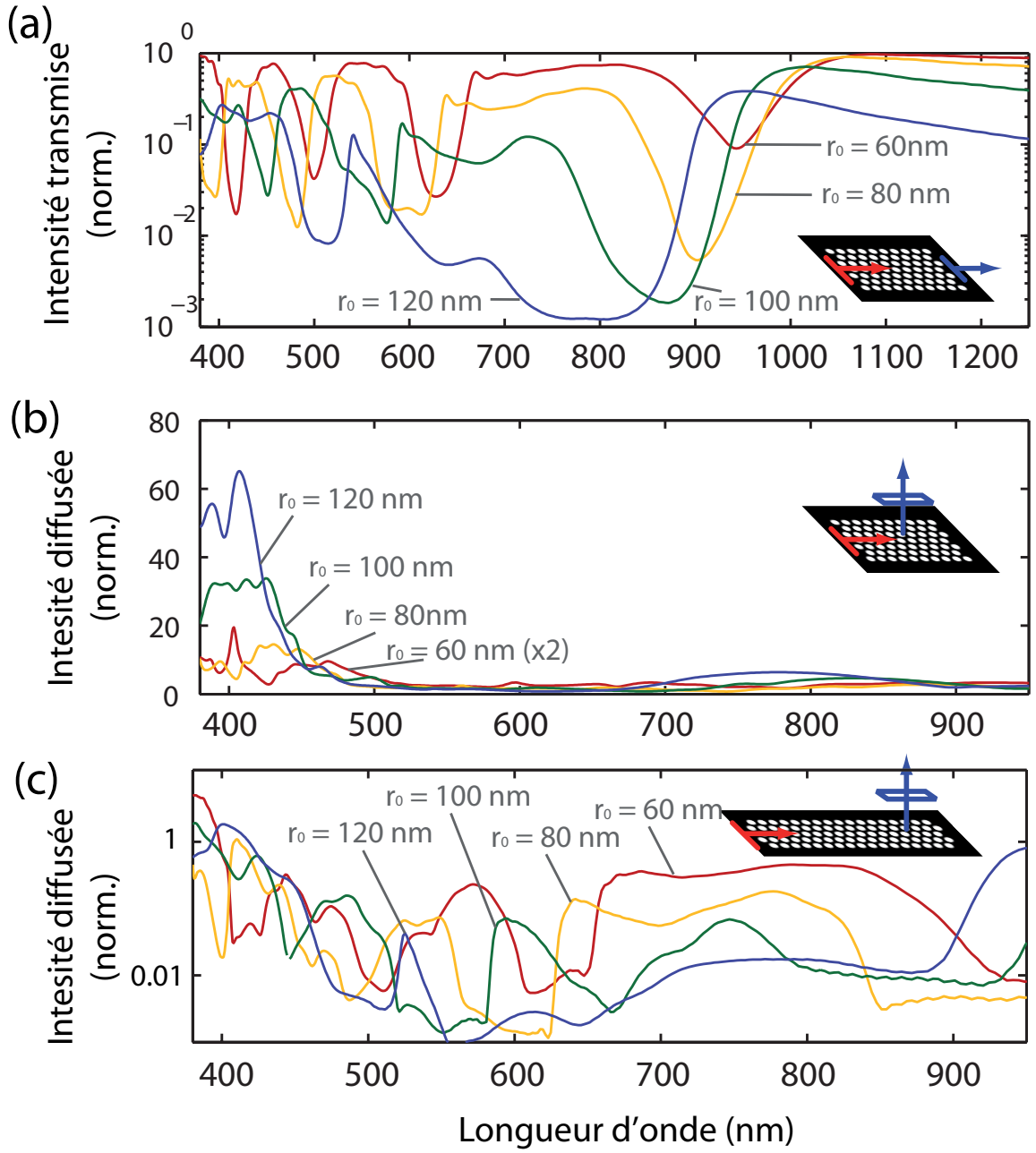

FIGURE 4.12 – Spectres simulés de la transmission à travers un cristal photonique sans cavité constitué de 9×7 trous, de période $a = 345$ nm et de rayons des trous $r_0 = 60$ (rouge), 80 (jaune), 100 (vert) et 120 nm (bleu) (échelle semi-logarithmique). (b) et (c) Spectres simulés de la lumière diffusée au-dessus de cristaux photoniques après propagation dans la structure d'une distance (b) $4a$ et (c) $15a$ (en (b) l'intensité de la courbe rouge est doublée par souci de clarté ; l'échelle de (c) est semi-logarithmique ; en encarts les géométries des différentes simulations).

4.8 Spectres diffusés par une cavité

4.8.1 Spectres non polarisés

Intéressons-nous en détails au spectre diffusé par la cavité présenté dans la figure 4.10. La portion intéressante de cette courbe est reproduite sur les figures 4.13(a)(en noir). On distingue plusieurs pics : un petit pic à 803 nm, un pic large et asymétrique à 755 nm, un petit pic à 734 nm et un pic très large à 692 nm. Ces pics correspondent aux modes résonants de la cavité et témoignent de la validité du principe sur lequel repose notre dispositif : éclairer les cavités avec une source blanche et par la tranche permet la détection des modes d'une cavité de cristal photonique par l'analyse de la diffusion.

4.8.2 Spectres polarisés

Une compréhension plus poussée de ce spectre est obtenue par la mesure des spectres de diffusion polarisés, obtenus en normalisant les spectres polarisés bruts (figure 4.13(b)) par les spectres de diffusion polarisés correspondant de la surface plane de nitrure de silicium adjacente (figure 4.13(c)). La polarisation d'analyse est soit parallèle à l'axe de la cavité (axe x, courbe verte) soit perpendiculaire à cet axe (axe y, courbe bleue).

Dans notre dispositif, le faisceau source est dirigé sur l'échantillon dans la direction x, et ne devrait donc pas posséder de composante du champ électrique E_x capable d'exciter les modes de polarisation x. On observe pourtant des modes polarisés suivant les deux directions.

Afin d'expliquer cette observation, nous proposons l'hypothèse suivante : la divergence du faisceau fait que la lumière ne se propage pas de façon rectiligne et uniquement suivant l'axe x dans l'échantillon, et donne lieu à des diffusions multiples par les structure photoniques et les impuretés. La lumière couplée à la cavité n'est alors pas polarisée uniquement suivant l'axe y.

On remarque également que le spectre (normalisé) polarisé suivant x est plus intense que le spectre (normalisé) polarisé suivant y. Cela vient des spectres de la surface plane de nitrure de silicium servant à la normalisation, plus intenses pour une polarisation d'analyse orientée suivant l'axe y, la lumière se propageant dans l'échantillon principalement suivant l'axe x.

Nous trouvons deux modes proches polarisés suivant l'axe x à 749 et 734 nm (courbe verte), que nous nommons TEx1 et TEx2 respectivement, de facteurs de qualité, calculés comme le rapport de la longueur d'onde des pics sur leur largeur à mi-hauteur, évalués à 60 et 65 respectivement ; et deux modes bien séparés polarisés suivant l'axe y à 802 et 756 nm, que nous nommons TEy1 et TEy2 respectivement, de facteurs de qualité évalués à 180 et 120 respectivement. La bosse à 697 nm du spectre non polarisé (en noir) est plus difficile à interpréter. On trouve une bosse suivant l'axe x à 689 nm, avec un facteur de qualité d'environ 35, et un pic très peu intense et large polarisé suivant l'axe y à 699 nm, de facteur de qualité évalué à 50. Nous montrerons dans les sections suivantes que ce sont des modes, que nous nommerons TEx3 et TEy3 respectivement. Les valeurs expérimentales des positions spectrales et des facteurs de qualité de ces différentes modes sont répertoriées dans la table 4.1 ainsi que les valeurs calculées par FDTD, que nous commenterons plus tard.

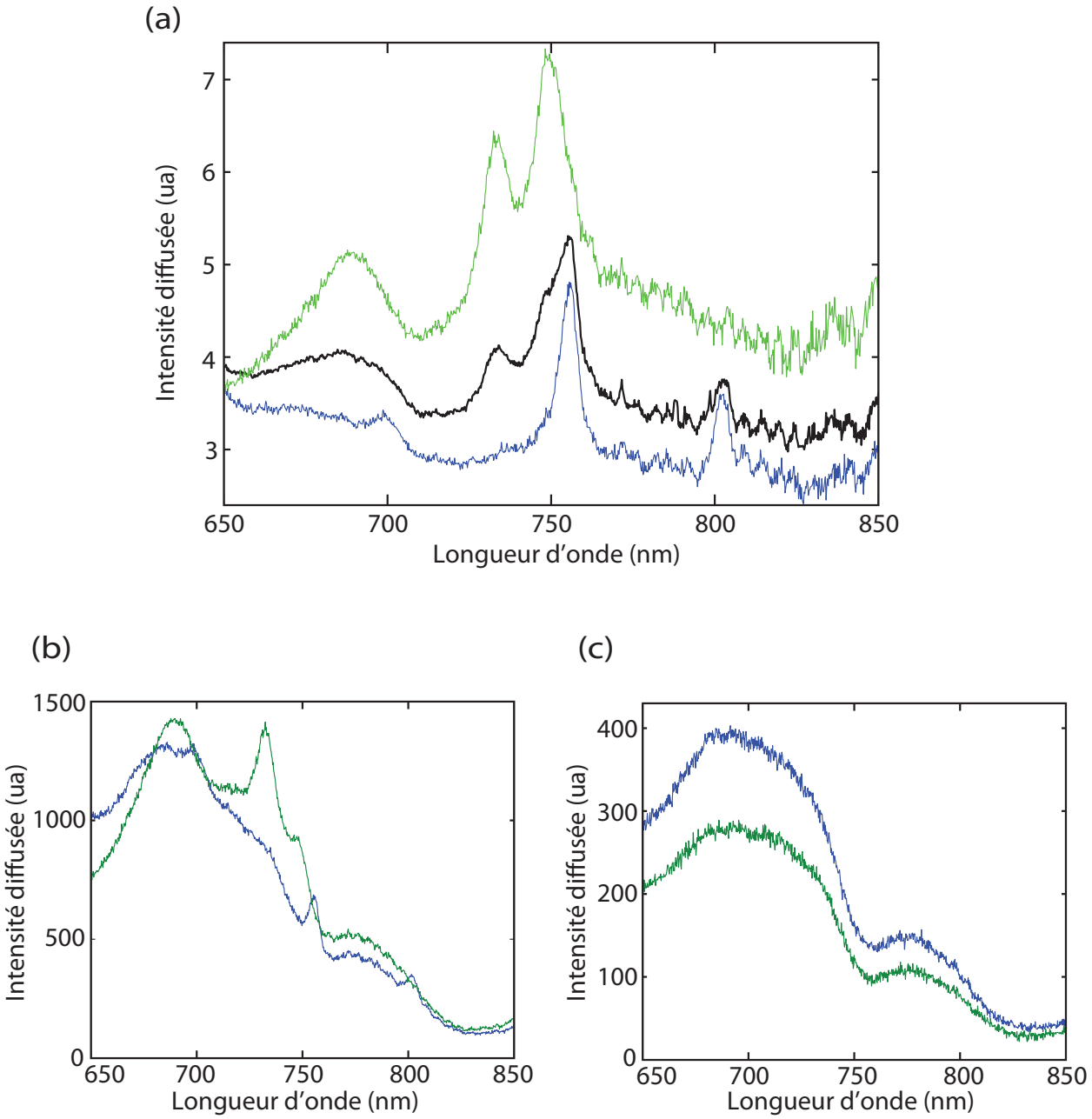

FIGURE 4.13 – Spectres de diffusion expérimentaux. (a) Spectres normalisés polarisés suivant x (en vert) et y (en bleu) de la lumière diffusée par une cavité de paramètres $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 100\,\text{nm}$. Ces spectres sont obtenus en normalisant les spectres de la figure (b) par les spectres de la figure (c). La courbe noire représente le spectre normalisé non polarisé. (b) Spectres non normalisés polarisés suivant x (en vert) et y (en bleu) de la lumière diffusée par une cavité de paramètres $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 100\,\text{nm}$. (c) Spectres polarisés suivant x (en vert) et y (en bleu) de la lumière diffusée par la surface plane de nitrure de silicium.

	TEy1	TEy2	TEy3	TEx1	TEx2	TEx3	TEx
λ_{exp} (nm)	802	756	699	749	734	689	
λ_{th} (nm)	832	785	716				764
Q_{exp}	180	120	50	60	65	35	
Q_{th}	65	60	30				23

TABLE 4.1 – Valeurs des positions spectrales et des facteurs de qualité des modes de polarisation x et y d'une cavité L3 de paramètres $a = 345\,\text{nm}$, $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 100\,\text{nm}$.

4.8.3 Comparaison avec les spectres rapportés dans la littérature

Nous comparons ces résultats expérimentaux aux travaux de Makarova *et al.* [115] et Barth *et al.* [88], dans lesquels des cavités de type L3 membranaires en nitrure de silicium de paramètre r_0/a proche du nôtre ($r_0/a = 0,4$ dans la première référence, 0,3 dans la seconde et 0,38 pour notre cavité) présentant des modes dans le visible sont étudiées.

Makarova *et al.* identifient deux modes polarisés suivant y et un mode large polarisé suivant x, à 657, 711 et 719 nm respectivement et de facteurs de qualité compris entre 200 et 300. Bart *et al.* trouvent deux modes polarisés suivant y et deux autres suivant x (trois pour la cavité dont la géométrie a été optimisée), compris entre 580 et 680 nm, avec des facteurs de qualité compris entre 300 et 350 pour des cavités non modifiées (1600 pour la cavité optimisée). La période des trous, légèrement inférieure de $a = 330\,\text{nm}$ pour la première référence et nettement inférieure de $a = 270\,\text{nm}$ pour la seconde, explique que les modes résonants observés par les auteurs soient décalés vers les basses longueurs d'onde par rapport aux nôtres.

Les auteurs de ces références observent donc un nombre de modes comparable à celui mesuré pour notre cavité. Les facteurs de qualité mesurés plus élevés s'expliquent par le fait que les cavités étudiées dans ces références sont de type membranaire.

4.8.4 Comparaison avec les simulations

Facteurs de qualité

Les facteurs de qualité calculés par FDTD sont nettement plus bas que ceux mesurés sur les spectres expérimentaux. Ceci constitue une question à laquelle nous ne savons pas répondre en l'état actuel de cette étude. Cette observation est d'autant plus étonnante que nous n'avons pas pris en compte dans les simulations l'inclinaison des parois des trous, leur forme, qui n'est pas parfaitement circulaire, ou la rugosité du nitrure de silicium, autant de facteurs qui ont tendance à abaisser le facteur de qualité des modes [119, 121].

Cependant, nous savons qu'il est possible d'obtenir des facteurs de qualité élevés avec un cristal photonique sur substrat de verre. Dans une étude menée antérieurement à ma thèse [66], il a été démontré théoriquement qu'une cavité sur substrat de verre peut présenter autour de

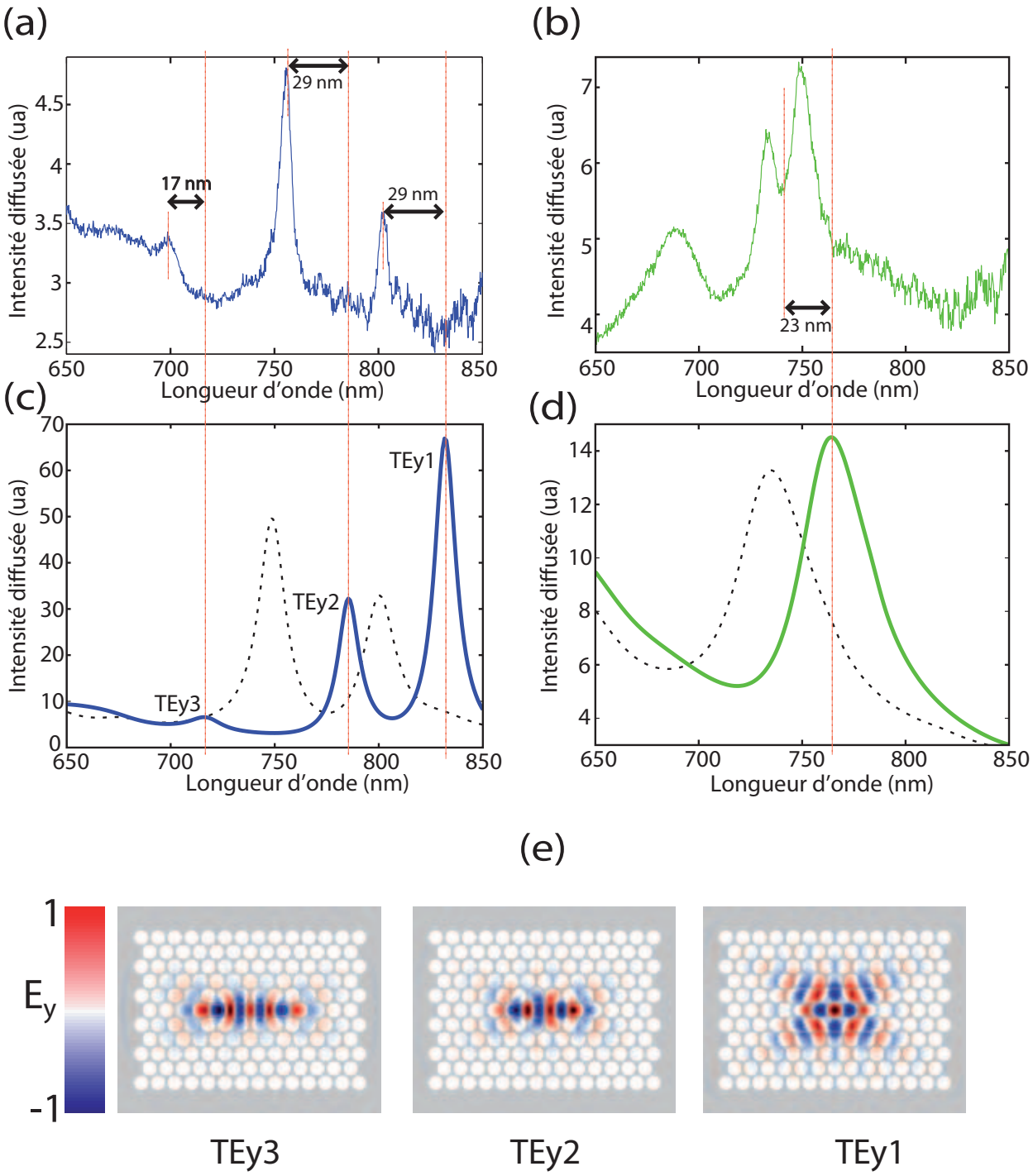

FIGURE 4.14 – Comparaison des spectres expérimentaux et théoriques. (a) et (b) Spectres expérimentaux polarisés suivant y et x respectivement. Les paramètres de la cavité sont $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 100\,\text{nm}$. (c) et (d) Spectres théoriques polarisés suivant y et x respectivement. En trait plein, les paramètres de la cavité sont $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 100\,\text{nm}$. En pointillés, les paramètres de la cavité sont $r_0 = 140\,\text{nm}$ et $r_1 = 110\,\text{nm}$. (e) Distributions E_y des modes TEy1, TEy2 et TEy3 à un instant t donné.

800 nm des modes résonants dont les facteurs de qualité atteignent $Q \approx 900$ si la géométrie de la cavité est modifiée avec le jeu de paramètres adéquat. Les paramètres en question sont le rayon et la taille des trous au bord de la cavité et le rayon des trous situés juste au-dessus et en-dessous de la cavité. Notons également que la période des trous du cristal et leur rayon sont plus petits ($a = 325$ nm et $r_0 = 0,25a$, contre $a = 345$ nm et $r_0 \approx 0,38a$ pour nos cavités).

La qualité du confinement d'un mode est extrêmement sensible aux ajustements apportés à la géométrie de la cavité. Les informations que nous possédons sur la structure des cavités étudiées dans ce manuscrit (période et rayon des trous, épaisseur de la couche guidante) influent de façon importante sur le facteur de qualité des modes, et une erreur sur l'estimation de ces paramètres peut avoir des conséquences importantes sur les facteurs de qualité calculés. Il serait intéressant de mesurer la profondeur des trous du cristal photonique, acteur essentiel du confinement, mais que nous ne pouvons déterminer que par des méthodes destructives. Pour ces raisons, nous nous concentrons dans la suite de cette section sur la position spectrale des modes, correctement décrite par nos calculs.

Analyse du spectre polarisé suivant y

Nous comparons ces spectres expérimentaux à nos calculs numériques de FDTD. La figure 4.14(a) représente les spectres expérimentaux de polarisation y (identiques à ceux de la figure 4.13(a)) et la figure 4.14(c) le spectre théorique de même polarisation. Les paramètres de la structure simulée sont ceux déterminés par AFM ($r_0 = 130$ nm, $r_1 = 100$ nm et $s = 0$, en trait plein), et le spectre calculé 4.14(c) est donc identique à celui présenté et analysé dans le chapitre précédent.

Nous associons les trois pics du spectre expérimental polarisé suivant y aux modes TEy1, TEy2 et TEy3, malgré un décalage spectral vers les basses énergies des spectres simulés de 29 nm pour les modes TEy1 et TEy2, et de 17 nm pour le mode TEy3, ce qui correspond à une erreur inférieure à 4%. Plusieurs sources d'erreurs existent. Ainsi, on peut attribuer ce décalage à la taille de la pointe AFM, de l'ordre d'une dizaine de nanomètres et qui induit une sous-évaluation systématique du rayon des trous d'environ 10 nm. Par exemple, la comparaison du spectre expérimental avec le spectre simulé pour une cavité de paramètres $r_0 = 140$ nm et $r_1 = 110$ nm (en pointillés sur la figure 4.14) permet de réduire l'erreur sur la position des pics à 1% environ.

La figure 4.14(e) présente les distributions de E_y des modes TEy1, TEy2 et TEy3 à un instant t donné après que la source à l'intérieur de la cavité se soit éteinte. Le champ électrique des modes TEy2 et TEy3 est distribué sur toute la longueur de la cavité, alors que celui du mode TEy1 a tendance à se concentrer au centre.

Analyse du spectres polarisé suivant x

Comparaison avec les spectres rapportés dans la littérature :
Le calcul du spectre des modes polarisés suivant l'axe x (figure 4.14(d)) ne permet pas de retrouver les trois pics mesurés à 690, 733 et 749 nm par notre dispositif (figure 4.14(b)). Nous comparons à nouveau nos spectres à ceux de deux publications :

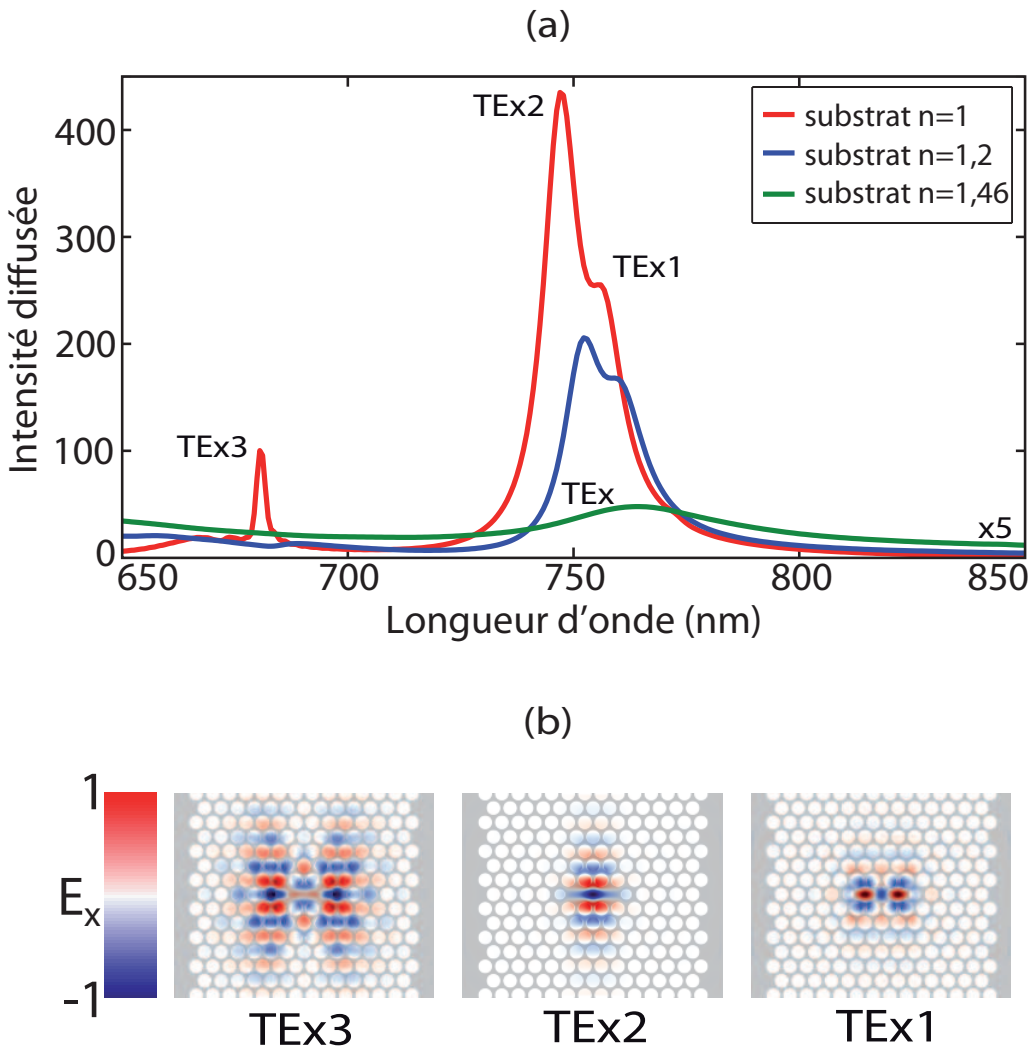

FIGURE 4.15 – (a) Spectre de diffusion des modes de polarisation x d'une cavité L3, pour des substrats d'indices $n = 1$ (rouge), 1,2 (bleu) et 1,5 (vert). Les paramètres du cristal sont $a = 345\,\text{nm}$, $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 100\,\text{nm}$. (b) Distributions de E_x associées aux modes TEx1, TEx2 et TEx3 d'une cavité membranaire (courbe rouge sur la figure (a)).

- les travaux de Bart *et al* [88], dans lesquels le spectre expérimental polarisé suivant x présente trois modes situés à 615, 625 et 630 nm. Les deux plus hauts sont attribués à deux modes calculés théoriquement.

- les travaux de Chalcraft *et al.* [102], où un mode polarisé suivant x à 890 nm est mesuré. L'épaisseur de la couche de nitrure de silicium de $e = 0,58a$, nettement plus fine que celle de nos échantillons de $e = 0.84a$, explique que les modes observés soient situés à des longueurs d'onde plus élevées, malgré une période des trous plus courte de $a = 240$ nm. Dans leurs calculs, ils présentent deux modes de polarisation x dont la distribution du champ est identique à ceux présentés par Barth *et al.*, et également d'un troisième plus bas en longueur d'onde.

La première référence présente donc un spectre expérimental similaire au nôtre, et la seconde propose un calcul pouvant expliquer les trois pics observés expérimentalement. Nous supposons que ces trois modes ne sont pas reproduits par notre théorie car les facteurs de qualités calculés sont trop bas.

Simulation du spectre des modes pour une cavité membranaire
Nous effectuons alors le calcul du spectre des modes de cavité pour différentes valeurs de l'indice n du substrat, dans le but d'améliorer artificiellement les conditions de confinement dans nos simulations. Ces spectres sont tracés sur la figure 4.15(a), l'indice du substrat valant $n = 1,46$ (vert), 1,2 (bleu) et 1 (rouge), et les paramètres des cavités étant $a = 345$ nm, $r_0 = 130$ nm et $r_1 = 100$ nm. Le spectre calculé pour $n = 1$ correspond donc au spectre de diffusion d'une cavité membranaire (qui ne correspond pas à notre système) et celui calculé pour $n = 1,46$ correspond à notre système.

Pour $n = 1,46$, le mode TEx à 764 nm est large et son intensité est faible. Pour $n = 1,2$, on voit apparaître deux modes proches spectralement à 752 et 760 nm. Pour $n = 1$, on observe deux modes à 747 et 756 nm, et l'apparition d'un troisième mode à 681 nm. Ce dernier spectre est similaire au spectre expérimental présenté dans la référence [88], et les distributions de E_x de ces modes sont comparables à celles calculées dans la référence [102]. Nous nommons ces trois modes TEx1, TEx2 et TEx3 par ordre croisant d'énergie. Le champ électrique du mode TEx2 est principalement distribué au centre de la cavité. Pour le mode TEx1, la distribution est symétrique par rapport au centre de la cavité, mais n'atteint pas les trous de bords, contrairement à celle du mode TEx3, pour lequel le champ électrique se concentre sur les trous de bords de la cavité.

L'élargissement continu des pics de $n = 1$ à $n = 1,46$ nous amène donc à supposer que le pic TEx consiste en deux pics de modes TEx1 et TEx2 non résolus en raison du faible facteur de qualité obtenu par nos calculs (ces deux pics étant par contre distingués expérimentalement du fait du facteur de qualité plus important). Nous confirmons ceci en traçant sur la figure 4.16 la distribution de E_x du mode TEx (dans le cas de notre système : $n = 1,46$), après extinction de la source placée dans la cavité et à deux instants différents. Ces instants sont choisis de façon à ce que l'amplitude de l'un des modes soit nulle tandis que celle du second mode ne l'est pas. Ces deux distributions sont représentées sur la figure 4.16 : on reconnaît les distributions de E_x des modes TEx1 et TEx2 calculées pour une cavité membranaire (voir figure 4.15(b)).

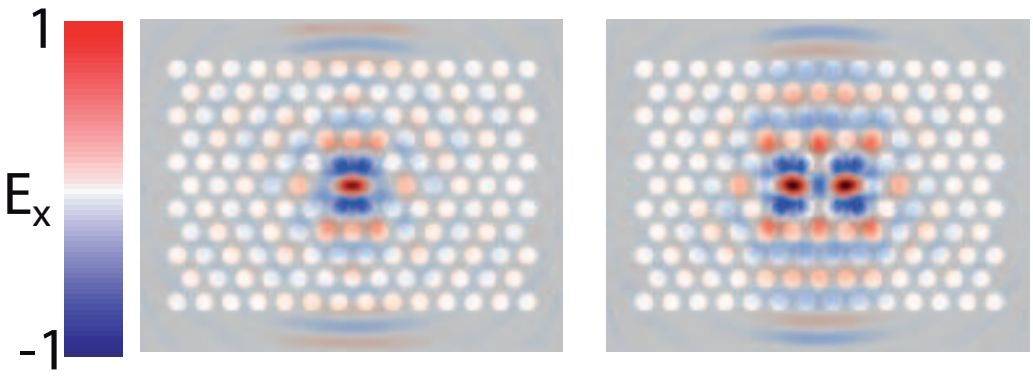

FIGURE 4.16 – Distribution de E_x du mode TEx d'une cavité avec substrat de verre, calculée après extinction de la source à deux instants différents. On reconnaît les distributions de E_x des modes TEx1 et TEx2 identifiés pour une cavité membranaire dans la figure 4.15(b).

Conclusion sur le spectre expérimental de polarisation x
Nous en concluons que les deux modes de basses énergies observés expérimentalement sont les modes TEx1 et TEx2, avec un décalage spectral d'une vingtaine de nanomètres entre le pic simulé à 764 nm et les deux pics expérimentaux vers 740 nm, du même ordre que celui observé pour les modes de polarisation y.

En revanche, le mode TEx3 n'apparaît que dans le calcul du spectre de diffusion d'une structure membranaire (courbe rouge sur la figure 4.15(a), à 681 nm), et n'est pas observé sur le spectre pour $n = 1,46$ (spectre théorique pour une structure correspondant à notre système), en raison des facteurs de qualité calculés trop faibles. Expérimentalement, on n'observe pas sur le spectre 4.14(b) de pic aussi marqué autour de 681 nm pouvant correspondre au mode TEx3, excepté la bosse située à 689 nm. Cependant, ce mode sera clairement vu dans la section sur le spectre de diffusion d'autres cavités.

Nous avons caractérisé les modes résonants d'une cavité planaire de cristal photonique par spectroscopie de diffusion. La cavité étudiée présente au total six modes dans le domaine visible, trois modes de polarisation y et trois de polarisation x, de facteurs de qualité compris entre 35 et 180. La position spectrale de ces modes est correctement décrite par nos calculs de FDTD, avec cependant un décalage systématique de 25 nm pour tous les modes. Dans la section suivante, nous étudions l'influence de la géométrie de la cavité sur la position et le facteur de qualité des modes.

4.9 Influence de la géométrie de la cavité

Dans cette section, nous étudions l'influence des paramètres r_0, r_1 et s sur les modes résonants. Les figures 4.17, 4.18 et 4.19 montrent les spectres de polarisation y et x pour différentes valeurs de r_0, r_1 et s, respectivement (les spectres sont décalés en intensité pour plus de clarté). La modification de ces paramètres influe sur la position et le facteur de qualité des modes, et nous comparons ces observations expérimentales à des calculs par FDTD.

De façon générale, les calculs décrivent qualitativement bien l'influence de la géométrie de la cavité, avec cependant comme discuté dans la section précédente un décalage spectral systématique vers les hautes longueurs d'onde de la position des modes simulés, et un facteur de qualité nettement plus bas. L'évolution du facteur de qualité expérimental des modes polarisés suivant x n'est pas représentée, les modes TEx1 et TEx2 étant trop proches pour pouvoir mesurer leur largeur, et le mode TEx3 n'étant pas résolu par nos simulations. Nous commençons par observer l'influence du rayon des trous du cristal r_0.

4.9.1 Influence du rayon des trous du cristal r_0

Influence du paramètre r_0 sur la position des modes

Les figures 4.17(a) et (b) représentent les spectres de la lumière diffusée suivant les polarisations y et x respectivement, pour des cavités dont le paramètre r_0 vaut 120, 130 et 145 nm. Le rayon des trous de bord r_1 n'est pas le même pour chaque cavité, le changement du rayon r_0 introduisant une contrainte différente sur le matériau lors du procédé de lithographie, qui modifie le rayon r_1 par rapport à la valeur codée. Cependant, nous supposons que le paramètre r_1 joue un rôle mineur par rapport au paramètre r_0, ce que confirmera la section suivante.

On observe les deux pics TEy1 et TEy2, se déplacer vers les basses longueurs d'onde, avec un décalage important de 61 et 40 nm respectivement, entre les cavités de paramètre r_0 120 et 145 nm. De la même façon, on observe les deux pics TEx1 et TEx2 se déplacer de 57 nm.

Nous attribuons ce décalage au fait que la bande interdite d'un cristal photonique se décale vers les hautes énergies avec l'augmentation des trous du cristal. Sur la figure 3.4(c) du chapitre précédent, les bandes interdites formées pour $r_0 = 120$, 130 et 145 nm ($a/r_0 = 0,35$, 0,38 et 0,42 respectivement) sont centrées à 790, 765 et 720 nm respectivement, soit un décalage total de 70 nm, du même ordre que celui observé expérimentalement. En effet, à mesure que le facteur de remplissage diminue, l'indice moyen de la structure diminue aussi et l'énergie des bandes augmente.

Influence du paramètre r_0 sur le facteur de qualité des modes de polarisation y

Prenons pour exemple le mode TEy2. Pour deux cavités de paramètres $r_0 = 120$ nm et $r_0 = 145$ nm, on mesure sur les spectres expérimentaux des facteurs de qualité de $Q = 130 \pm 20$ et 110 ± 20 respectivement. On observe donc une diminution du facteur de qualité avec l'augmentation de r_0 en accord avec la théorie, l'écart étant cependant du même ordre que l'incertitude.

En revanche, comme nous venons de le voir, le décalage en longueur d'onde est très important (40 nm). Le facteur de qualité étant calculé comme le rapport de la longueur d'onde du mode sur sa largeur à mi-hauteur, cette diminution semble être principalement due au décalage du mode vers les basses longueurs d'onde. C'est une des raisons principale (avec l'utilisation de matériaux moins confinant) pour laquelle les facteurs de qualité dans le visible sont faibles comparés à ceux mesurés dans l'infrarouge.

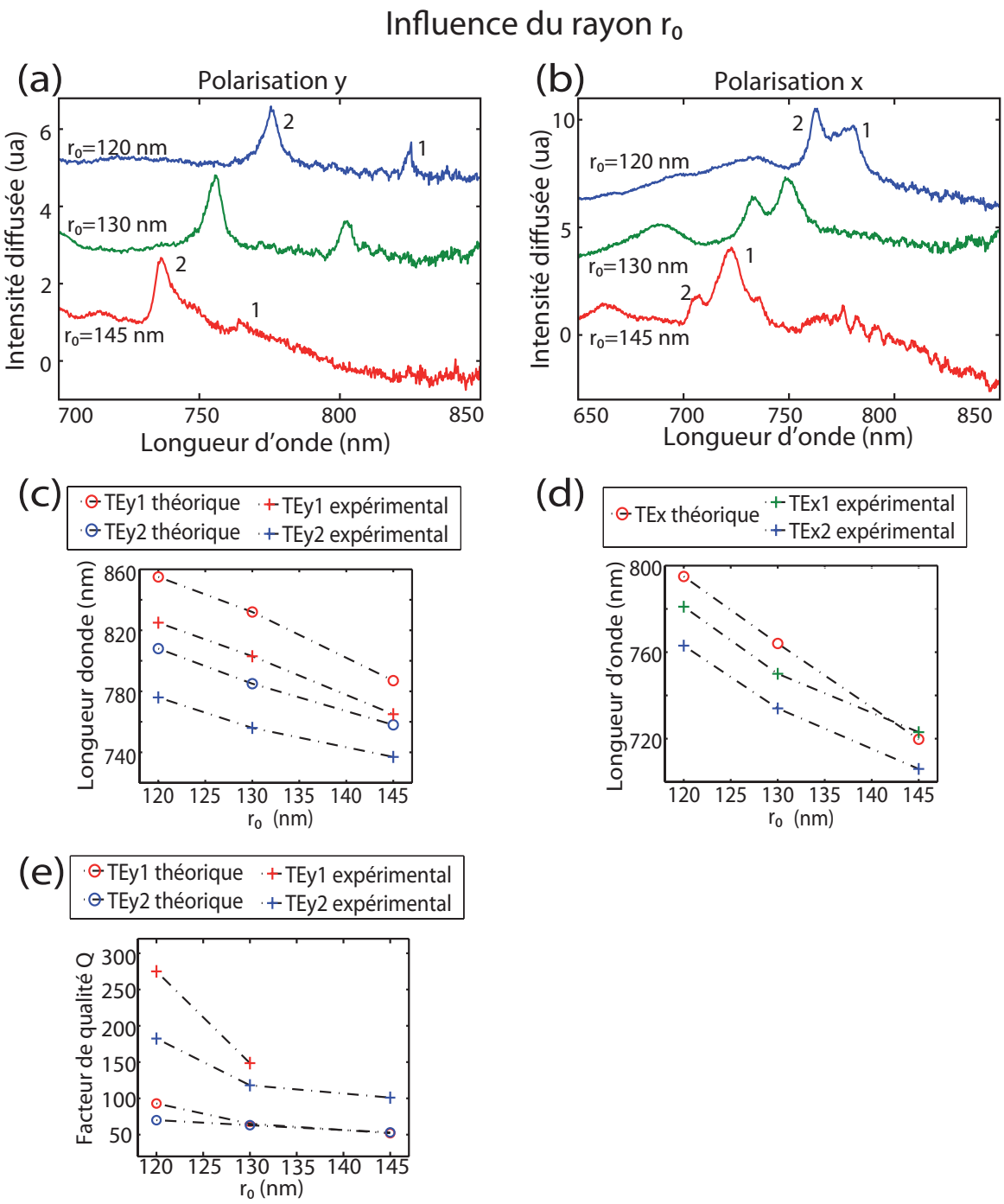

FIGURE 4.17 – Influence du paramètre r_0 sur la fréquence des modes et leur facteur de qualité. (a) et (b) Spectres de diffusion expérimentaux polarisés suivant les axes y et x respectivement. Les paramètres des cavités sont $r_0 = 120\,\text{nm}$ et $r_1 = 85\,\text{nm}$ (en bleu), $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 100\,\text{nm}$ (en vert), $r_0 = 145\,\text{nm}$ et $r_1 = 105\,\text{nm}$ (en rouge). Pour les trois cavités, $a = 345\,\text{nm}$ et $s = 0$. Les spectres sont décalés en intensité pour plus de clarté. (c) et (d) Comparaison aux calculs de la position des modes, suivant les polarisations y et x respectivement. (e) Comparaison aux calculs du facteur de qualité des modes suivant la polarisation y. Les croix correspondent aux valeurs des expérimentales et les cercles aux valeurs théoriques.

4.9.2 Influence du rayon des trous de bord de la cavité r_1

Les paramètres r_1 et s agissent de façon semblable sur les modes. Le fait de diminuer r_1 ou d'augmenter s augmente la taille de la cavité. Les modes sont localisés dans un milieu d'indice élevé plus étendu et leur énergie baisse en conséquence. C'est ce que nous vérifions en faisant varier le paramètre r_1 dans un premier temps sur les figures 4.18(a) et (b), qui représentent les spectres polarisés suivant y et x respectivement pour deux cavités dont le paramètre r_1 varie de 100 à 70 nm.

Influence du paramètre r_1 sur la position spectrale des modes

Sur la figure 4.18(a), on observe un décalage des modes TEy2 et TEy3 de 13 nm pour le premier et de 20 nm pour le second. Le décalage est donc relativement important, et s'explique par la distribution du champ électrique des modes TEy2 et TEy3, qui est répartie selon toute la longueur de la cavité, et en particulier sur les bords (voir figure 4.14(e)), où a lieu la modification de la cavité. On remarque que le mode TEy3 est bien mieux défini à $r_1 = 70$ nm, ce décalage vers les hautes longueurs d'onde lui permettant d'être plus centré dans la bande interdite et donc mieux confiné.

A l'opposé, les modes TEy1, TEx1 et TEx2 se déplacent très peu, avec un décalage inférieur à 2 nm. En effet, leur énergie étant principalement concentrée au centre de la cavité (voir figure 4.14(e)), l'élargissement de la cavité n'a que peu d'effet.

En revanche, on observe une transformation importante de la bosse à 690 nm, que nous associons au mode TEx3 calculé pour une structure membranaire, avec un décalage de 23 nm vers les hautes longueurs d'onde. Son profil devient alors nettement plus marqué, ce qui est dû à sa position à présent mieux centrée dans la bande interdite. La distribution de E_x de ce mode, concentre son énergie sur les trous aux extrémités de la cavité (voir figure 4.15(b)), ce qui explique cette sensibilité à la variation du paramètre r_1. Les calculs par FDTD (non montrés ici) montrent une tendance similaire du mode TEx3 d'une cavité membranaire, avec un décalage de 19 nm vers les hautes longueurs d'onde.

Influence du paramètre r_1 sur le facteur de qualité des modes de polarisation y

Prenons cette fois encore le mode TEy2. D'une cavité de paramètre $r_1 = 100$ nm à une cavité de paramètre $r_1 = 70$ nm, avec $r_0 = 130$ nm et $s = 0$ pour les deux cavités, le facteur de qualité du mode TEy2 vaut 135 ± 20 et 120 ± 20 respectivement. On observe donc une légère diminution du facteur de qualité. Cependant, cette diminution est de l'ordre de l'erreur sur la mesure du facteur de qualité : le calcul ne prévoit aucun effet.

Par contre, le facteur de qualité des modes TEy3 et TEx3 (non tracé sur la figure) varie de façon importante avec la diminution du paramètre r_1, avec une augmentation de 100% pour le mode TEy3 ($Q = 50 \pm 5$ à 100 ± 10) et de 160% pour le mode TEx3 ($Q = 35 \pm 5$ à 80 ± 10).

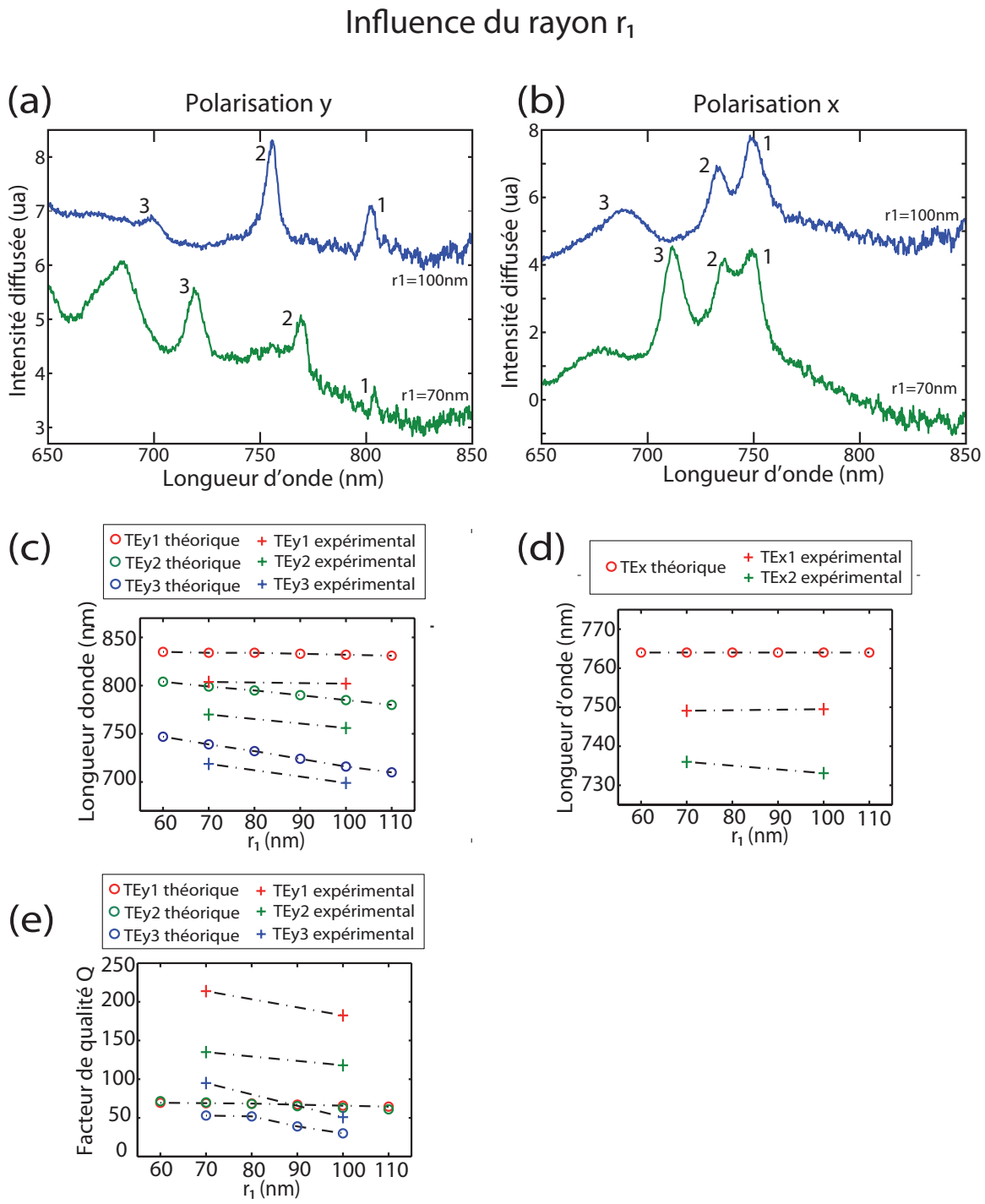

FIGURE 4.18 – Influence du paramètre r_1 sur la fréquence des modes et leur facteur de qualité. (a) et (b) Spectres de diffusion expérimentaux polarisés suivant les axes y et x respectivement. Les paramètres des cavités sont $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 100\,\text{nm}$ (en bleu), $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 70\,\text{nm}$ (en vert). Pour les trois cavités, $a = 345\,\text{nm}$ et $s = 0$. Les spectres sont décalés en intensité pour plus de clarté. (c) et (d) Comparaison aux calculs de la position des modes, suivant les polarisations y et x respectivement. (e) Comparaison aux calculs du facteur de qualité des modes suivant la polarisation y. Les croix correzpondent aux valeurs des expérimentales et les cercles aux valeurs théoriques. Les croix représentent les points expérimentaux et les cercles les points théoriques.

4.9.3 Influence du décalage des trous de bord s

Influence du paramètre s sur la position des modes

Les figures 4.19(a) et (b) représentent les spectres de diffusions polarisés suivant y et x respectivement pour des cavités de paramètres communs $r_0 = 130\,\text{nm}$, $r_1 = 70\,\text{nm}$, et dont le paramètre s varie de 0 à 0.15a.

Sur la figure 4.19(a) et (b), on observe un décalage vers les hautes longueurs d'onde de 0, 12 et 7 nm pour les modes TEy1, TEy2 et TEy3 respectivement ; un décalage nul pour les modes TEx1 et TEx2, et de 3 nm pour le mode TEx3. De la même façon que pour le paramètre r_1, le paramètre s n'affecte pas les modes TEx1 et TEx2, leur énergie étant concentrée au centre de la cavité, et son influence est faible sur le mode TEy1, pour la même raison.

Ainsi, nous observons que la taille et le décalage des trous de bord d'une cavité L3 ont peu d'influence sur les modes TEy1, TEx1 et TEx2 dont le champ électrique est concentré au centre de la cavité, avec un décalage total inférieur à 2 nm. A l'opposé, leur influence est non négligeable pour les modes TEy2, TEy3 et TEx3 dont une partie importante du champ électrique est distribuée en bord de cavité, avec un décalage total d'environ 25 nm.

Nous somme alors en mesure de confirmer l'attribution des pics observés expérimentalement aux modes théoriques de par la façon dont le champ électrique de ces modes est spatialement distribué dans la cavité. Nous mettons également en évidence l'importance de cette distribution à l'intérieur de la cavité lorsqu'il est question des paramètres à varier pour modifier la position en fréquence d'un mode. Les distributions du champ électrique des modes TEy1, TEx1 et TEx2 suggèrent que les paramètres pertinents à varier pour obtenir un décalage spectral important sont le rayon et la position des trous de bords situés au-dessus et en-dessous de la cavité.

Influence du paramètre s sur le facteur de qualité des modes

De la cavité de paramètre $s = 0$ à celle de paramètre $s = 0.15a$, le facteur de qualité du mode TEy2 augmente de $Q = 135 \pm 20$ à 195 ± 50, les largeurs à mi-hauteur valant 6 et 4 nm respectivement. Nous observons donc un affinement du pic. Nous n'observons pas de variation du facteur de qualité pour les modes de polarisation x.

Il a donc été possible d'améliorer le facteur de qualité du mode TEy2 d'un facteur 1,6 en modifiant la taille et la position des trous de bords de la cavité.

4.10 Conclusion

Nous avons étudié les résonances optiques de cavités de cristal photoniques par spectroscopie de diffusion, méthode originale développée au sein de l'équipe. Cette méthode non destructive nous a permis de déterminer la position spectrale, la polarisation et le facteur de qualité de

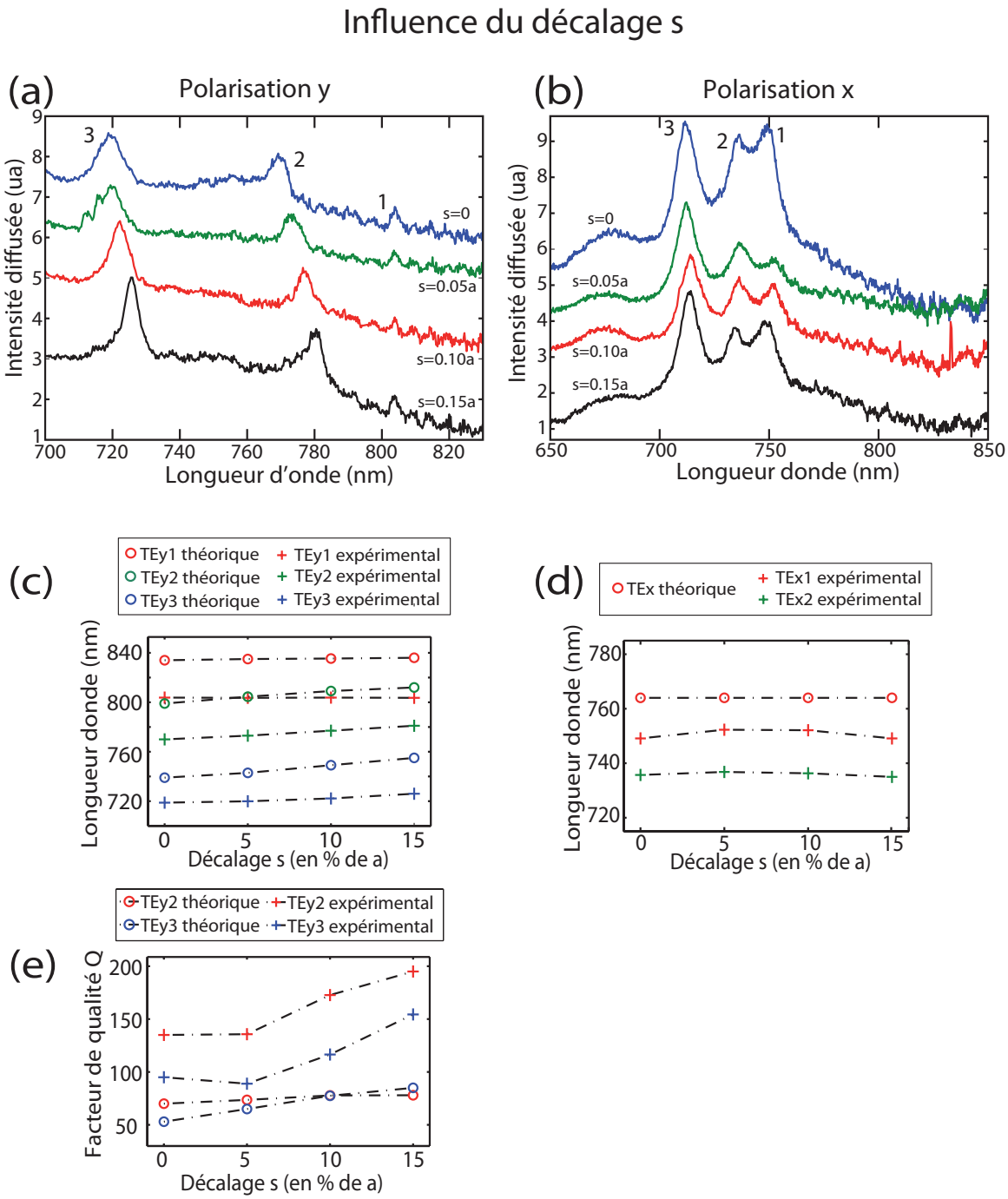

FIGURE 4.19 – Influence du paramètre s sur la fréquence des modes et leur facteur de qualité. (a) et (b) Spectres de diffusion expérimentaux polarisés suivant les axes y et x respectivement. Les quatre cavités partagent les mêmes paramètres $a = 345\,\text{nm}$, $r_0 = 130\,\text{nm}$ et $r_1 = 70\,\text{nm}$. Le paramètre s des cavités vaut $s = 0$ (en bleu), $s = 0.05a$ (en vert), $s = 0.10a$ (en rouge), $s = 0.15a$ (en noir). Les spectres sont décalés en intensité pour plus de clarté. (c) et (d) Comparaison aux calculs de la position des modes, suivant les polarisations y et x respectivement. (e) Comparaison aux calculs du facteur de qualité des modes suivant la polarisation y. Les croix correspondent aux valeurs des expérimentales et les cercles aux valeurs théoriques. Les croix représentent les points expérimentaux et les cercles les points théoriques.

modes résonants d'une cavité dont la bande interdite est située dans le domaine visible. Ces résultats expérimentaux ont été comparés à des simulations de FDTD, avec un bon accord qualitatif, excepté pour les facteurs de qualité des modes, nettement sous-évalués par les calculs.

Nous avons démontré la possibilité d'effectuer un réglage grossier sur la position en longueur d'onde des modes de plusieurs dizaines de nanomètres en modifiant le paramètre r_0, le paramètre a étant un autre paramètre possible que nous n'avons pas testé, et un réglage fin d'une dizaine de nanomètres en modifiant les paramètres r_1 et s. Cette étude de l'influence de la géométrie sur la position spectrale des modes nous a également permis de confirmer l'attribution de chaque pic expérimental à un mode théorique de distribution spatiale du champ électrique donné. Nous avons également montré que les paramètres r_1 et s améliorent le facteur de qualité des modes dont le champ électrique est distribué sur les bords de la cavité.

En étudiant l'influence de ces paramètres sur les modes résonants de cavités planaires de cristal photonique, nous avons illustré le potentiel de notre méthode de spectroscopie par diffusion, confirmé le bon accord qualitatif avec les simulations, et distingué les paramètres pertinents pour accorder les propriétés de résonance d'une cavité.

Conclusion générale

Le travail de thèse présenté dans ce manuscrit concerne l'étude optique de deux types de structures photoniques : des opales et des cavités L3 de cristal photonique planaire.

Les opales ont fait l'objet d'une étude approfondie de leurs propriétés de réflexion par goniométrie. L'évolution en longueur d'onde des pics de réflexion mesurés peut être ajustée par une loi de Bragg, méthode généralement employée dans la littérature pour déterminer les caractéristiques structurelles d'une opale. Nous avons mis en évidence l'écart important entre les valeurs ajustées par cette méthode et celles déterminées par des techniques de caractérisation directe (AFM, ellipsométrie). Nous avons alors proposé une nouvelle méthode de détermination de l'indice effectif d'une opale, qui consiste à centrer l'anticroisement expérimental au point K de la zone de Brillouin. L'accord entre la valeur ainsi déterminée et celle mesurée par ellipsométrie est satisfaisant.

Avec cette nouvelle valeur de l'indice, beaucoup de phénomènes mal compris observés sur les opales peut être expliqué de façon simple et cohérente par le calcul du diagramme de bandes, dont nous avons discuté par ailleurs le lien avec le modèle de la diffraction sur des plans parallèles. Ainsi, nous avons proposé un mécanisme expliquant l'observation du pic de réflexion secondaire aux angles de détection spéculaires : le faisceau est diffracté successivement par les familles de plans $(\bar{1}11)$ puis (200). Nous avons démontré que pour l'angle d'incidence satisfaisant aux conditions de diffraction multiple ($48°$ dans notre opale), ce mécanisme explique l'angle et la longueur d'onde mesurés expérimentalement.

Nous avons également étudié l'annulation du pic de réflexion principal de polarisation p, phénomène généralement interprété dans la littérature comme un effet Brewster. Nous avons montré par l'étude du diagramme de bandes de l'opale qu'il existe effectivement un angle pour lequel la largeur de la bande interdite pour la polarisation p est minimale, et que cet angle est différent de l'angle de Brewster calculé pour un milieu d'indice homogène. Cet angle peut par contre s'expliquer de façon quantitativement satisfaisante par le calcul di diagramme de bandes, à condition que l'indice utilisé soit correct.

Ces résultats pourront être confirmés par des études hors spéculaires et des mesures effectuées dans des plans de la zone de Brillouin différents de celui sondé dans ces travaux.

Les cavités L3 de cristal photonique planaire ont été caractérisées optiquement par une technique développée dans notre équipe et dont le dispositif et ses propriétés optiques ont été présentés en détail. Cette technique est fondée sur l'analyse spectroscopique de la lumière diffusée par la structure photonique, et nous avons déterminé sa validité en comparant nos

mesures à des simulations de FDTD. Dans un premier temps, nous avons établi que le spectre diffusé par le cristal photonique (sans cavité), qui présente un pic intense aux basses longueurs d'onde, n'est pas significatif d'un effet de cristal photonique, bien qu'il dépende fortement de la taille des trous.

En revanche, le spectre de la lumière diffusée par la cavité présente des pics correspondant bien à des modes confinés, comme le confirme la comparaison avec les simulations. Des mesures résolues en polarisation nous ont permis de distinguer clairement certains modes très proches en longueur d'onde mais de polarisations différentes. Notre avons montré que notre technique donne accès à la position spectrale, la polarisation et au facteur de qualités des modes de cavité. Enfin, une étude de l'influence de la géométrie sur la position spectrale et les facteurs de qualité des modes nous a permis de mettre en évidence les paramètres à varier pertinents pour ajuster les caractéristiques d'un mode, et a démontré l'efficacité de notre technique.

Les suites à ces travaux pourront porter sur :
- le couplage à des émetteurs
- l'étude de structures à plus fort confinement du champ électromagnétique

L'équipe « Nanophotonique et optique quantique » travaille actuellement sur l'établissement de procédés permettant l'inclusion d'un défaut contrôlé dans une opale. Ce défaut, qui consiste en un plan de billes de taille ou d'indice différents (cavité planaire), offrirait la possibilité de manipuler l'émission spontanée d'un fluorophore.

En ce qui concerne les cavités L3, une perspective est de coupler les cavités à un ensemble de nanocristaux, notre technique de spectroscopie de diffusion nous permettant d'obtenir suffisamment d'informations sur les modes résonants pour synthétiser des nanocristaux dont la longueur d'onde et éventuellement la polarisation émises offriraient des conditions de couplage idéales. L'obtention d'un tel dépôt sur les cavités étudiées dans ce manuscrit est difficile. Des études préliminaires (non discutées dans ce manuscrit) ont montré que si le dépôt est trop concentré, les trous du cristal photonique sont bouchés et les effets de bande interdite perdus. De plus, la largeur de l'émission d'un ensemble de nanocristaux est typiquement d'une cinquantaine de nanomètres. Le nombre de modes résonants présents dans une cavité L3 limite alors la qualité du couplage en multipliant les canaux radiatifs des émetteurs.

Il serait alors intéressant d'étudier des cavités H1 de type membranaire, dont les modes sont en nombre réduit et les facteurs de qualités meilleurs. Ces cavités résolveraient également le problème technique posé par le dépôt, la solution excédentaire ayant alors la possibilité de se déposer sous la cavité.

Enfin, une perspective sera de coupler une cavité à un émetteur unique déposé à la surface de la cavité afin d'obtenir une exaltation/inhibition de son émission. Cependant le dépôt d'un émetteur aussi petit qu'un nanocristal (typiquement 5 nm de diamètre) dans la cavité est un défi technologique. Différentes pistes sont envisagées : le positionnement par pointe AFM et la nanoxérographie.

Bibliographie

[1] Eli Yablonovitch. Inhibited Spontaneous Emission in Solid-State Physics and Electronics. *Physical Review Letters*, 58(20) :2059–2062, May 1987.

[2] Sajeev John and Raghavan Rangarajan. Optimal structures for classical wave localization : an alternative to the ioffe-regel criterion. *Physical Review B*, 38(14) :10101–10104, November 1988.

[3] E. Yablonovitch and T. J. Gmitter. Photonic band structure : The face-centered-cubic case. *Physical Review Letters*, 63 :1950–1953, October 1989.

[4] K. M. Ho, C. T. Chan, and C. M. Soukoulis. Existence of a photonic gap in periodic dielectric structures. *Physical Review Letters*, 65(25) :3152–3155, December 1990.

[5] E. Yablonovitch and K. M. Leung. Hope for photonic bandgaps. *Nature*, 351(6324) :278, May 1991.

[6] E. Yablonovitch, T. J. Gmitter, and K. M. Leung. Photonic band structure : The face-centered-cubic case employing nonspherical atoms. *Physical Review Letters*, 67(17) :2295–2298, October 1991.

[7] H. S. Sözüer, J. W. Haus, and R. Inguva. Photonic bands : Convergence problems with the plane-wave method. *Physical Review B*, 45 :13962–13972, June 1992.

[8] H. S. Sözüer and Jonathan P. Dowling. Photonic Band Calculations for Woodpile Structures. *Journal of Modern Optics*, 41(2) :231–239, February 1994.

[9] K. Ho, C. Chan, C. Soukoulis, R. Biswas, and M. Sigalas. Photonic band gaps in three dimensions : New layer-by-layer periodic structures. *Solid State Communications*, 89(5) :413–416, February 1994.

[10] Noritsugu Yamamoto, Susumu Noda, and Alongkarn Chutinan. Development of One Period of a Three-Dimensional Photonic Crystal in the 5-10 Micrometers Wavelength Region by Wafer Fusion and Laser Beam Diffraction Pattern Observation Techniques. *Japanese Journal of Applied Physics*, 37(Part 2, No. 9A/B) :L1052–L1054, September 1998.

[11] S. Y. Lin, J. G. Fleming, D. L. Hetherington, B. K. Smith, R. Biswas, K. M. Ho, M. M. Sigalas, W. Zubrzycki, S. R. Kurtz, and Jim Bur. Athree-dimensional photonic crystal operating at infraredwavelengths. *Nature*, 394 :251–253, July 1998.

[12] V. Astratov, V. Bogomolov, A. Kaplyanskii, A. Prokofiev, L. Samoilovich, S. Samoilovich, and Yu Vlasov. Optical spectroscopy of opal matrices with CdS embedded in its pores : Quantum confinement and photonic band gap effects. *Il Nuovo Cimento D*, 17(11) :1349–1354, November 1995.

[13] O. D. Velev, T. A. Jede, R. F. Lobo, and A. M. Lenhoff. Porous silica via colloidal crystallization. *Nature*, 389(6650) :447–448, October 1997.

[14] Damien Bernier. *Propriétés de superprisme des cristaux photoniques sur substrats SOI pour le démultiplexage en longueur d'onde.* PhD thesis, 2008.

[15] Hongliang Ren, Chun Jiang, Weisheng Hu, Mingyi Gao, Yang Qu, and Fanghua Wang. Channel drop filter in two-dimensional triangular lattice photonic crystals. *Journal of the Optical Society of America A*, 24(10) :A7+.

[16] Céline Vion, Carlos Barthou, Paul Bénalloul, Catherine Schwob, Laurent Coolen, Alex Gruzintev, Gennadii Emel'chenko, Vladimir Masalov, Jean M. Frigerio, and Agnès Maître. Manipulating emission of CdTeSe nanocrystals embedded in three-dimensional photonic crystals. *Journal of Applied Physics*, 105(11) :113120+, 2009.

[17] Céline Vion, Piernicola Spinicelli, Laurent Coolen, Catherine Schwob, Jean-Marc Frigerio, Jean-Pierre Hermier, and Agnès Maître. Controlled modification of single colloidal CdSe/ZnS nanocrystal fluorescence through interactions with a gold surface. *Opt. Express*, 18(7) :7440–7455, March 2010.

[18] Hugo Frederich, Fangfang Wen, Julien Laverdant, Laurent Coolen, Catherine Schwob, and Agnès Maître. Isotropic broadband absorption by a macroscopic self-organized plasmonic crystal. *Opt. Express*, 19(24) :24424–24433, November 2011.

[19] Charles Kittel. *Physique de l'état solide.* Chapter 1, seventh edition.

[20] Pochi Yeh. *Optical waves in layered media.* Chapter 6, first edition.

[21] John D. Joannoupoulos, Steven G. Johnson, Joshua N. Winn, and Robert D. Meade. *Photonic Crystals - Molding the folw of light.* Chapter 1, second edition.

[22] Steven Johnson and John Joannopoulos. Block-iterative frequency-domain methods for Maxwell's equations in a planewave basis. *Opt. Express*, 8(3) :173–190, January 2001.

[23] Sohrab Ismail-Beigi and T. A. Arias. New algebraic formulation of density functional calculation. *Computer Physics Communications*, 128(1-2) :1–45, June 2000.

[24] R. D. Meade, A. M. Rappe, K. D. Brommer, J. D. Joannopoulos, and O. L. Alerhand. Accurate theoretical analysis of photonic band-gap materials. *Physical Review B*, 48(11) :8434–8437, September 1993.

[25] U. Grüning, V. Lehmann, S. Ottow, and K. Busch. Macroporous silicon with a complete two-dimensional photonic band gap centered at 5 μm. *Applied Physics Letters*, 68(6) :747–749, 1996.

[26] S. Rowson, A. Chelnokov, and J. M. Lourtioz. Two-Dimensional Photonic Crystals in Macroporous Silicon : From Mid-Infrared (10 m) to Telecommunication Wavelengths (1.3-1.5 m). *J. Lightwave Technol.*, 17(11) :1989+, November 1999.

[27] Thi-Phuong Ngo. *Cristaux photoniques sur silicium avec des îlots quantiques Ge/Si et du germanium pur.* PhD thesis, 2010.

[28] E. Vekris, V. Kitaev, D. D. Perovic, J. S. Aitchison, and G. A. Ozin. Visualization of Stacking Faults and their Formation in Colloidal Photonic Crystal Films. *Advanced Materials*, 20(6) :1110–1116, March 2008.

[29] Alvaro Blanco, Emmanuel Chomski, Serguei Grabtchak, Marta Ibisate, Sajeev John, Stephen W. Leonard, Cefe Lopez, Francisco Meseguer, Hernan Miguez, Jessica P. Mondia, Geoffrey A. Ozin, Ovidiu Toader, and Henry M. van Driel. Large-scale synthesis of a silicon photonic crystal with a complete three-dimensional bandgap near 1.5 micrometres. *Nature*, 405(6785) :437–440, May 2000.

[30] Florencio García-Santamaría, Verónica Salgueiriño Maceira, Cefe López, and Luis M. Liz-Marzán. Synthetic Opals Based on Silica-Coated Gold Nanoparticles. *Langmuir*, 18(11) :4519–4522, May 2002.

[31] Daniel P Puzzo, Andre C Arsenault, Ian Manners, and Geoffrey A Ozin. Electroactive Inverse Opal : A Single Material for All Colors. *Angewandte Chemie International Edition*, 48(5) :943–947, January 2009.

[32] A. V. Baryshev, A. B. Khanikaev, M. Inoue, P. B. Lim, A. V. Sel'kin, G. Yushin, and M. F. Limonov. Resonant Behavior and Selective Switching of Stop Bands in Three-Dimensional Photonic Crystals with Inhomogeneous Components. *Physical Review Letters*, 99 :063906+, August 2007.

[33] Peter Lodahl, A. Floris van Driel, Ivan S. Nikolaev, Arie Irman, Karin Overgaag, Daniël Vanmaekelbergh, and Willem L. Vos. Controlling the dynamics of spontaneous emission from quantum dots by photonic crystals. *Nature*, 430(7000) :654–657, August 2004.

[34] Worawut Khunsin, Michael Scharrer, Larry K. Aagesen, Mark A. Anderson, Robert P. H. Chang, Clivia M. Sotomayor Torres, and Sergei G. Romanov. Resonance amplification of defect emission in ZnO-inverted opal. *Opt. Lett.*, 34(10) :1519–1521, May 2009.

[35] Alessandra Balestreri, Lucio Andreani, and Mario Agio. Optical properties and diffraction effects in opal photonic crystals. *Physical Review E*, 74(3), September 2006.

[36] J. F. Galisteo López, M. Galli, A. Balestreri, L. C. Andreani, and C. López. Optical response of artificial opals oriented along the Gamma X direction. *Applied Physics Letters*, 90(23) :231112+, 2007.

[37] L. C. Andreani, A. Balestreri, J. F. Galisteo López, M. Galli, M. Patrini, E. Descrovi, A. Chiodoni, F. Giorgis, L. Pallavidino, and F. Geobaldo. Optical response with threefold symmetry axis on oriented microdomains of opal photonic crystals. *Physical Review B*, 78 :205304+, November 2008.

[38] A. Baryshev, A. Kaplyanskii, V. Kosobukin, M. Limonov, and A. Skvortsov. Spectroscopy of the photonic stop band in synthetic opals. *Physics of the Solid State*, 46(7) :1331–1339, July 2004.

[39] Worawut Khunsin, Gudrun Kocher, Sergei G. Romanov, and Clivia M. Torres. Quantitative analysis of lattice ordering in thin film opal-based photonic crystals. *Advanced Functional Materials*, 18(17) :2471–2479, September 2008.

[40] V. Astratov. Photonic band gaps in 3D ordered fcc silica matrices. *Physics Letters A*, 222(5) :349–353, November 1996.

[41] H. Míguez, F. Meseguer, C. López, A. Mifsud, J. S. Moya, and L. Vázquez. Evidence of FCC Crystallization of SiO2 Nanospheres. *Langmuir*, 13(23) :6009–6011, November 1997.

[42] H. M'ıguez, C. López, F. Meseguer, A. Blanco, L. Vázquez, R. Mayoral, M. Oca Na, V. Fornés, and A. Mifsud. Photonic crystal properties of packed submicrometric SiO[sub 2] spheres. *Applied Physics Letters*, 71(9) :1148–1150, 1997.

[43] Orlin D. Velev and Abraham M. Lenhoff. Colloidal crystals as templates for porous materials. *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 5(1-2) :56–63, March 2000.

[44] P. V. Braun and P. Wiltzius. Electrochemical Fabrication of 3D Microperiodic Porous Materials. *Advanced Materials*, 13(7) :482–485, April 2001.

[45] Olexiy Kamalin, Robert A. Schoonheydt, Kurt Wostyn, Koen Clays, Andre Persoons, and Imre Dekany. Ordering and optical properties of monolayers and multilayers of silica spheres deposited by the Langmuir-Blodgett method. *J. Mater. Chem.*, 12(11) :3268–3274, 2002.

[46] Stéphane Reculusa and Serge Ravaine. Synthesis of Colloidal Crystals of Controllable Thickness through the Langmuir-Blodgett Technique. *Chemistry of Materials*, 15(2) :598–605, January 2003.

[47] P. Massé, G. Pouclet, and S. Ravaine. Periodic Distribution of Planar Defects in Colloidal Photonic Crystals. *Advanced Materials*, 20(3) :584–587, February 2008.

[48] Sean Wong, Vladimir Kitaev, and Geoffrey A. Ozin. Colloidal Crystal Films : Advances in Universality and Perfection. *J. Am. Chem. Soc.*, 125(50) :15589–15598, November 2003.

[49] Antony S. Dimitrov and Kuniaki Nagayama. Continuous Convective Assembling of Fine Particles into Two-Dimensional Arrays on Solid Surfaces. *Langmuir*, 12(5) :1303–1311, January 1996.

[50] P. Jiang, J. F. Bertone, K. S. Hwang, and V. L. Colvin. Single-Crystal Colloidal Multilayers of Controlled Thickness. *Chemistry of Materials*, 11(8) :2132–2140, August 1999.

[51] John D. Joannopoulos. Photonics : Self-assembly lights up. *Nature*, 414(6861) :257–258, November 2001.

[52] D. . J. Norris, E. . G. Arlinghaus, L. Meng, R. Heiny, and L. . E. Scriven. Opaline Photonic Crystals : How Does Self-Assembly Work ? *Advanced Materials*, 16(16) :1393–1399, August 2004.

[53] Yurii A. Vlasov, Xiang-Zheng Bo, James C. Sturm, and David J. Norris. On-chip natural assembly of silicon photonic bandgap crystals. *Nature*, 414(6861) :289–293, November 2001.

[54] W. Stober. Controlled growth of monodisperse silica spheres in the micron size range*1. *Journal of Colloid and Interface Science*, 26(1) :62–69, January 1968.

[55] J. W. Goodwin, J. Hearn, C. C. Ho, and R. H. Ottewill. Studies on the preparation and characterisation of monodisperse polystyrene laticee. *Colloid & Polymer Science*, 252(6) :464–471, June 1974.

[56] L. V. Woodcock. Entropy difference between the face-centred cubic and hexagonal close-packed crystal structures. *Nature*, 385(6612) :141–143, January 1997.

[57] D. Gasperino, L. Meng, D. Norris, and J. Derby. The role of fluid flow and convective steering during the assembly of colloidal crystals. *Journal of Crystal Growth*, 310(1) :131–139, January 2008.

[58] Serge Berthier. *Optique des milieux composites.* Chapter 7,first edition.

[59] Serge Berthier. *Optique des milieux composites.* Chapter 8, first edition.

[60] Norbert Nagy, András Deák, Zoltán Hórvölgyi, Miklós Fried, Attila Agod, and István Bársony. Ellipsometry of Silica Nanoparticulate Langmuir-Blodgett Films for the Verification of the Validity of Effective Medium Approximations. *Langmuir*, 22(20) :8416–8423, September 2006.

[61] Henry van Driel and Willem Vos. Multiple Bragg wave coupling in photonic band-gap crystals. *Physical Review B*, 62(15) :9872–9875, October 2000.

[62] S. G. Romanov, T. Maka, C. M. Sotomayor Torres, M. Müller, R. Zentel, D. Cassagne, J. Manzanares Martinez, and C. Jouanin. Diffraction of light from thin-film polymethylmethacrylate opaline photonic crystals. *Physical Review E*, 63(5) :056603+, April 2001.

[63] S. Romanov. Specific features of polarization anisotropy in optical reflection and transmission of colloidal photonic crystals. *Physics of the Solid State*, 52(4) :844–854, April 2010.

[64] Sergei G. Romanov, Ulf Peschel, Maria Bardosova, Sabine Essig, and Kurt Busch. Suppression of the critical angle of diffraction in thin-film colloidal photonic crystals. *Physical Review B*, 82(11) :115403+, September 2010.

[65] Jane F. Bertone, Peng Jiang, Kevin S. Hwang, Daniel M. Mittleman, and Vicki L. Colvin. Thickness Dependence of the Optical Properties of Ordered Silica-Air and Air-Polymer Photonic Crystals. *Physical Review Letters*, 83 :300–303, July 1999.

[66] Céline Vion. *Couplage de nanocristaux colloidaux à des structures photoniques.* PhD thesis, 2009.

[67] S. Romanov. Anisotropy of light propagation in thin opal films. *Physics of the Solid State*, 49(3) :536–546, March 2007.

[68] A. Bazhenova, A. Sel'kin, A. Men'shikova, and N. Shevchenko. Polarization-dependent suppression of Bragg reflections in light reflection from photonic crystals. *Physics of the Solid State*, 49(11) :2109–2120, November 2007.

[69] G. M. Gajiev, V. G. Golubev, D. A. Kurdyukov, A. V. Medvedev, A. B. Pevtsov, A. V. Sel'kin, and V. V. Travnikov. Bragg reflection spectroscopy of opal-like photonic crystals. *Physical Review B*, 72(20) :205115+, November 2005.

[70] R. Fujikawa, A. Baryshev, K. Nishimura, H. Uchida, and M. Inoue. Optical study on opaline thin films grown by vertical deposition. *Journal of Porous Materials*, 13(3) :287–290, August 2006.

[71] A. V. Baryshev, A. B. Khanikaev, R. Fujikawa, H. Uchida, and M. Inoue. Polarized light coupling to thin silica-air opal films grown by vertical deposition. *Physical Review B*, 76(1) :014305+, July 2007.

[72] I. Karpov, Samarov, V. Masalov, S. Bozhko, and G. Emel'chenko. The intrinsic structure of spherical particles of opal. *Physics of the Solid State*, 47(2) :347–351, February 2005.

[73] A. Moroz, M. Limonov, M. Rybin, and K. Samusev. Multiple Bragg diffraction in low-contrast photonic crystals based on synthetic opals. *Physics of the Solid State*, 53(6) :1105–1113, June 2011.

[74] F. López Tejeira, T. Ochiai, K. Sakoda, and J. Sánchez Dehesa. Symmetry characterization of eigenstates in opal-based photonic crystals. *Physical Review B*, 65 :195110+, April 2002.

[75] J. F. Galisteo Lopez, F. López Tejeira, S. Rubio, C. López, and J. Sánchez Dehesa. Experimental evidence of polarization dependence in the optical response of opal-based photonic crystals. *Applied Physics Letters*, 82(23) :4068–4070, 2003.

[76] A. V. Baryshev, A. B. Khanikaev, H. Uchida, M. Inoue, and M. F. Limonov. Interaction of polarized light with three-dimensional opal-based photonic crystals. *Physical Review B*, 73(3) :033103+, January 2006.

[77] Lifeng Li. New formulation of the Fourier modal method for crossed surface-relief gratings. *Journal of the Optical Society of America A*, 14(10) :2758–2767, October 1997.

[78] A. A. Dukin, N. A. Feoktistov, A. V. Medvedev, A. B. Pevtsov, V. G. Golubev, and A. V. Sel'kin. Polarization inhibition of the stop-band in distributed Bragg reflectors. *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics*, 8(8) :625–629, August 2006.

[79] Yu, M. A. Kaliteevski, and V. V. Nikolaev. Different regimes of light localization in a disordered photonic crystal. *Physical Review B*, 60(3) :1555–1562, July 1999.

[80] John D. Joannoupoulos, Steven G. Johnson, Joshua N. Winn, and Robert D. Meade. *Photonic Crystals - Molding the flow of light.* Chapter 4, second edition.

[81] John D. Joannoupoulos, Steven G. Johnson, Joshua N. Winn, and Robert D. Meade. *Photonic Crystals - Molding the flow of light.* Chapter 5, second edition.

[82] Jean-Michel Lourtioz, Henri Benisty, Vincent Berger, Jean-Michel Gérard, Daniel Maystre, and Alexei Tchelnokov. *Les cristaux photoniques ou la lumière en cage.* Chapter 1, first edition.

[83] Yoshihiro Akahane, Takashi Asano, Bong-Shik Song, and Susumu Noda. High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal. *Nature*, 425(6961) :944–947, October 2003.

[84] Yoshihiro Akahane, Takashi Asano, Bong-Shik Song, and Susumu Noda. Fine-tuned high-Q photonic-crystal nanocavity. *Optics Express*, 13(4) :1202–1214, February 2005.

[85] S. Strauf, K. Hennessy, M. Rakher, Y. S. Choi, A. Badolato, L. Andreani, E. Hu, P. Petroff, and D. Bouwmeester. Self-Tuned Quantum Dot Gain in Photonic Crystal Lasers. *Physical Review Letters*, 96(12) :127404+, March 2006.

[86] Wen H. Chang, Wen Y. Chen, Hsiang S. Chang, Tung P. Hsieh, Jen I. Chyi, and Tzu M. Hsu. Efficient Single-Photon Sources Based on Low-Density Quantum Dots in Photonic-Crystal Nanocavities. *Physical Review Letters*, 96(11) :117401+, March 2006.

[87] M. Kitamura, S. Iwamoto, and Y. Arakawa. Enhanced light emission from an organic photonic crystal with a nanocavity. *Applied Physics Letters*, 87(15) :151119+, 2005.

[88] Michael Barth, Josef Kouba, Johannes Stingl, Bernd Löchel, and Oliver Benson. Modification of visible spontaneous emission with silicon nitride photonic crystal nanocavities. *Optics Express*, 15(25) :17231+.

[89] Kelley Rivoire, Andrei Faraon, and Jelena Vuckovic. Gallium phosphide photonic crystal nanocavities in the visible. *Applied Physics Letters*, 93(6) :063103+, 2008.

[90] K. Hennessy, C. Reese, A. Badolato, C. F. Wang, A. Imamoglu, P. M. Petroff, E. Hu, G. Jin, S. Shi, and D. W. Prather. Square-lattice photonic crystal microcavities for coupling to single InAs quantum dots. *Applied Physics Letters*, 83(18) :3650–3652, 2003.

[91] Y. S. Choi, K. Hennessy, R. Sharma, E. Haberer, Y. Gao, S. P. DenBaars, S. Nakamura, E. L. Hu, and C. Meier. GaN blue photonic crystal membrane nanocavities. *Applied Physics Letters*, 87(24) :243101+, 2005.

[92] Zhaoyu Zhang, Tomoyuki Yoshie, Xiaoliang Zhu, Jiajing Xu, and Axel Scherer. Visible two-dimensional photonic crystal slab laser. *Applied Physics Letters*, 89(7) :071102+, 2006.

[93] X. Li, P. Boucaud, X. Checoury, M. El Kurdi, S. David, S. Sauvage, N. Yam, F. Fossard, D. Bouchier, J. M. Fédéli, A. Salomon, V. Calvo, and E. Hadji. Quality factor control of Si-based two-dimensional photonic crystals with a Bragg mirror. *Applied Physics Letters*, 88(9) :091122+, 2006.

[94] Maria Makarova, Vanessa Sih, Joe Warga, Rui Li, Luca D. Negro, and Jelena Vuckovic. Enhanced light emission in photonic crystal nanocavities with Erbium-doped silicon nanocrystals. *Applied Physics Letters*, 92(16) :161107+, 2008.

[95] Ferruccio Pisanello, Antonio Qualtieri, Tiziana Stomeo, Luigi Martiradonna, Roberto Cingolani, Alberto Bramati, and Massimo De Vittorio. High-Purcell-factor dipolelike modes at visible wavelengths in H1 photonic crystal cavity. *Optics Letters*, 35(10) :1509+.

[96] A. Qualtieri, F. Pisanello, M. Grande, T. Stomeo, L. Martiradonna, G. Epifani, A. Fiore, A. Passaseo, and M. De Vittorio. Emission control of colloidal nanocrystals embedded in Si3N4 photonic crystal H1 nanocavities. *Microelectronic Engineering*, 87(5-8) :1435–1438, May 2010.

[97] Han Y. Ryu, Se H. Kim, Hong G. Park, and Yong H. Lee. Characteristics of single defect laser modes in a two-dimensional square lattice photonic crystal slab. *Journal of Applied Physics*, 93(2) :831–837, 2003.

[98] X. Li, P. Boucaud, X. Checoury, O. Kermarrec, Y. Campidelli, and D. Bensahel. Probing photonic crystals on silicon-on-insulator with Ge/Si self-assembled islands as an internal source. *Journal of Applied Physics*, 99(2) :023103+, 2006.

[99] J. S. Xia, Y. Ikegami, Y. Shiraki, N. Usami, and Y. Nakata. Strong resonant luminescence from Ge quantum dots in photonic crystal microcavity at room temperature. *Applied Physics Letters*, 89(20) :201102+, 2006.

[100] C. Sauvan, G. Lecamp, P. Lalanne, and J. P. Hugonin. Modal-reflectivity enhancement by geometry tuning in Photonic Crystal microcavities. *Optics Express*, 13(1) :245+, 2005.

[101] M. El Kurdi, X. Checoury, S. David, T. P. Ngo, N. Zerounian, P. Boucaud, O. Kermarrec, Y. Campidelli, and D. Bensahel. Quality factor of Si-based photonic crystal L3 nanocavities probed with an internal source. *Optics Express*, 16(12) :8780+.

[102] A. R. A. Chalcraft, S. Lam, D. O'Brien, T. F. Krauss, M. Sahin, D. Szymanski, D. Sanvitto, R. Oulton, M. S. Skolnick, A. M. Fox, D. M. Whittaker, H. Y. Liu, and M. Hopkinson. Mode structure of the L3 photonic crystal cavity. *Applied Physics Letters*, 90(24) :241117+, 2007.

[103] P. Lalanne, C. Sauvan, and J. P. Hugonin. Photon confinement in photonic crystal nanocavities. *Laser & Photon. Rev.*, 2(6) :514–526, December 2008.

[104] Joon Huh, Jeong K. Hwang, Han Y. Ryu, and Yong H. Lee. Nondegenerate monopole mode of single defect two-dimensional triangular photonic band-gap cavity. *Journal of Applied Physics*, 92(2) :654–659, 2002.

[105] Takasumi Tanabe, Akihiko Shinya, Eiichi Kuramochi, Shingo Kondo, Hideaki Taniyama, and Masaya Notomi. Single point defect photonic crystal nanocavity with ultrahigh quality factor achieved by using hexapole mode. *Applied Physics Letters*, 91(2) :021110+, 2007.

[106] Oskar Painter and Kartik Srinivasan. Polarization properties of dipolelike defect modes in photonic crystal nanocavities. *Optics Letters*, 27(5) :339+.

[107] A. Tandaechanurat, S. Iwamoto, M. Nomura, N. Kumagai, and Y. Arakawa. Increase of Q-factor in photonic crystal H1-defect nanocavities after closing of photonic bandgap with optimal slab thickness. *Optics Express*, 16(1) :448+.

[108] Kane Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media. *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, 14(3) :302–307, May 1966.

[109] Jean-Pierre Berenger. A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves. *Journal of Computational Physics*, 114(2) :185–200, October 1994.

[110] F. L. Teixeira and W. C. Chew. Analytical derivation of a conformal perfectly matched absorber for electromagnetic waves. *Microwave and Optical Technology Letters*, 17(4) :231–236, March 1998.

[111] D. Labilloy ;. *Cristaux photonique bidimensionnels pour le proche infrarouge : propriétés optiques et confinement*. PhD thesis, 1999.

[112] Cedrik Meier, Kevin Hennessy, Elaine D. Haberer, Rajat Sharma, Yong S. Choi, Kelly McGroddy, Stacia Keller, Steven P. DenBaars, Shuji Nakamura, and Evelyn L. Hu. Visible resonant modes in GaN-based photonic crystal membrane cavities. *Applied Physics Letters*, 88(3) :031111+, 2006.

[113] Dirk Englund, Andrei Faraon, Ilya Fushman, Nick Stoltz, Pierre Petroff, and Jelena Vuckovic. Controlling cavity reflectivity with a single quantum dot. *Nature*, 450(7171) :857–861, December 2007.

[114] O. Painter, R. K. Lee, A. Scherer, A. Yariv, J. D. O'Brien, P. D. Dapkus, and I. Kim. Two-Dimensional Photonic Band-Gap Defect Mode Laser. *Science*, 284(5421) :1819–1821, June 1999.

[115] Maria Makarova, Jelena Vuckovic, Hiroyuki Sanda, and Yoshio Nishi. Silicon-based photonic crystal nanocavity light emitters. *Applied Physics Letters*, 89(22) :221101+, 2006.

[116] Michael Barth, Nils Nüsse, Johannes Stingl, Bernd Löchel, and Oliver Benson. Emission properties of high-Q silicon nitride photonic crystal heterostructure cavities. *Applied Physics Letters*, 93(2) :021112+, 2008.

[117] Janik Wolters, Andreas W. Schell, Günter Kewes, Nils Nüsse, Max Schoengen, Henning Döscher, Thomas Hannappel, Bernd Löchel, Michael Barth, and Oliver Benson. Enhance-

ment of the zero phonon line emission from a single nitrogen vacancy center in a nanodiamond via coupling to a photonic crystal cavity. *Applied Physics Letters*, 97(14) :141108+, 2010.

[118] Susumu Noda, Alongkarn Chutinan, and Masahiro Imada. Trapping and emission of photons by a single defect in a photonic bandgap structure. *Nature*, 407(6804) :608–610, October 2000.

[119] Yoshinori Tanaka, Takashi Asano, Yoshihiro Akahane, Bong S. Song, and Susumu Noda. Theoretical investigation of a two-dimensional photonic crystal slab with truncated cone air holes. *Applied Physics Letters*, 82(11) :1661–1663, 2003.

[120] Bong-Shik Song, Susumu Noda, Takashi Asano, and Yoshihiro Akahane. Ultra-high-Q photonic double-heterostructure nanocavity. *Nature Materials*, 4(3) :207–210, February 2005.

[121] Takashi Asano, Bong-Shik Song, and Susumu Noda. Analysis of the experimental Q factors (˜ 1 million) of photonic crystal nanocavities. *Optics Express*, 14(5) :1996+, 2006.

[122] Yasushi Takahashi, Yoshinori Tanaka, Hiroyuki Hagino, Tomoyuki Sugiya, Yoshiya Sato, Takashi Asano, and Susumu Noda. Design and demonstration of high-Q photonic heterostructure nanocavities suitable for integration. *Optics Express*, 17(20) :18093+.

[123] M. Galli, S. L. Portalupi, M. Belotti, L. C. Andreani, L. O'Faolain, and T. F. Krauss. Light scattering and Fano resonances in high-Q photonic crystal nanocavities. *Applied Physics Letters*, 94(7) :071101+, 2009.

[124] Murray W. McCutcheon, Georg W. Rieger, Iva W. Cheung, Jeff F. Young, Dan Dalacu, Simon Frédérick, Philip J. Poole, Geof C. Aers, and Robin L. Williams. Resonant scattering and second-harmonic spectroscopy of planar photonic crystal microcavities. *Applied Physics Letters*, 87(22) :221110+, 2005.

Annexe

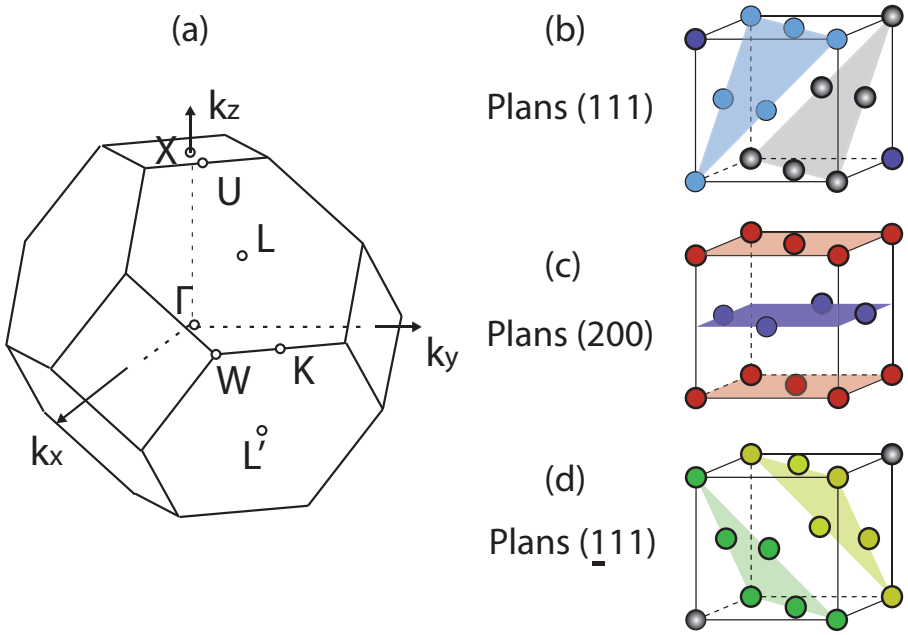

FIGURE 20 – (a) Zone de Brillouin de la structure cubique à faces centrées. Les lettres désignent les points de haute symétrie. (b), (c) et (d) Familles de plans de la structure cfc : (b) plans (111), (c) plans (200) et (d) plans ($\bar{1}$11).

Nous répertorions dans cette annexe les coordonnées des points de haute symétrie de la zone de Brillouin d'une structure cubique à faces centrées, ainsi que les angles entre ces points. On rappelle l'expression des vecteurs primitifs de la maille réciproque :

$$\boldsymbol{b}_1 = (2\pi/a)(-\hat{\boldsymbol{x}} + \hat{\boldsymbol{y}} + \hat{\boldsymbol{z}}) \quad \boldsymbol{b}_2 = (2\pi/a)(\hat{\boldsymbol{x}} - \hat{\boldsymbol{y}} + \hat{\boldsymbol{z}}) \quad \boldsymbol{b}_3 = (2\pi/a)(\hat{\boldsymbol{x}} + \hat{\boldsymbol{y}} - \hat{\boldsymbol{z}})$$

Ces vecteurs forment la zone de Brillouin représentée sur la figure 20(a), sur laquelle les lettres désignent les points de haute symétrie. Le point Γ est le centre de la zone de Brillouin et a pour coordonnées (0 0 0). Les coordonnées des autres points exprimées dans les bases $(\hat{\boldsymbol{x}}, \hat{\boldsymbol{y}}, \hat{\boldsymbol{z}})$ et $(\boldsymbol{b}_1, \boldsymbol{b}_2, \boldsymbol{b}_3)$ sont regroupées dans le tableau 2.

Les coordonnées des points de haute symétrie exprimées dans la base cartésienne $(\hat{\boldsymbol{x}}, \hat{\boldsymbol{y}}, \hat{\boldsymbol{z}})$ permettent de calculer les angles internes entre les différentes faces de la zone de Brillouin, associées à une famille de plans de la structure cfc (voir figure 20(b), (c) et (d)). Ces informations sont répertoriées dans la table 3.

	Coordonnées dans la base $(\hat{\boldsymbol{x}}, \hat{\boldsymbol{y}}, \hat{\boldsymbol{z}})$	Coordonnées dans la base $(\boldsymbol{b}_1, \boldsymbol{b}_2, \boldsymbol{b}_3)$
X	$(1\ 0\ 0)$	$\begin{pmatrix}0 & \frac{1}{2} & \frac{1}{2}\end{pmatrix}$
U	$\begin{pmatrix}1 & -\frac{1}{4} & \frac{1}{4}\end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix}0 & \frac{5}{8} & \frac{3}{8}\end{pmatrix}$
L	$\begin{pmatrix}\frac{1}{2} & -\frac{1}{2} & \frac{1}{2}\end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix}0 & \frac{1}{2} & 0\end{pmatrix}$
K	$\begin{pmatrix}\frac{3}{4} & 0 & \frac{3}{4}\end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix}\frac{3}{8} & \frac{3}{4} & \frac{3}{8}\end{pmatrix}$
W	$\begin{pmatrix}1 & 0 & \frac{1}{2}\end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix}\frac{1}{4} & \frac{3}{4} & \frac{1}{2}\end{pmatrix}$

TABLE 2 – Coordonnées des points de haute symétrie exprimées dans l'espace cartésien et le repère de la maille réciproque

Angle	Angle dans la structure cfc	Expression analytique	Valeur approchée
$\widehat{L\Gamma X}$	Angle entre les plans (111) et (200)	$\arccos(\sqrt{3}/3)$	54,74°
$\widehat{L\Gamma U}$		$\arccos(2/\sqrt{6})$	35,26°
$\widehat{L\Gamma L'}$	Angle entre les plans (111) et $(\bar{1}11)$	$2 * \widehat{L\Gamma K}$	70,52°
$\widehat{L\Gamma W}$		$\arccos\sqrt{3/5}$	39,23°

TABLE 3 – Angles formés par les différents points de haute symétrie de la zone de Brillouin