



HAL
open science

Contrôle de nano-antennes optiques par une commande électrique : tuner plasmonique et transduction

Johann Berthelot

► **To cite this version:**

Johann Berthelot. Contrôle de nano-antennes optiques par une commande électrique : tuner plasmonique et transduction. Autre [cond-mat.other]. Université de Bourgogne, 2011. Français. NNT : 2011DIJOS066 . tel-00741144

HAL Id: tel-00741144

<https://theses.hal.science/tel-00741144>

Submitted on 11 Oct 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.

UNIVERSITÉ DE BOURGOGNE

FACULTÉ DES SCIENCES

Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne

Département Nanosciences

CONTRÔLE DE NANO-ANTENNES OPTIQUES PAR UNE
COMMANDE ÉLECTRIQUE:
TUNER PLASMONIQUE ET TRANSDUCTION.

Thèse présentée devant l'Université de Bourgogne
pour obtenir le grade de Docteur (Mention Physique)

par

Johann Berthelot

Soutenue le **11 octobre 2011** devant la commission d'examen composée de :

Allegrini M.	Professeur, Univ. Pise	<i>Présidente</i>
Brevet P.F.	Professeur, Univ. Lyon	<i>Rapporteur</i>
Girard C.	Directeur de recherche CNRS, Univ. Toulouse	<i>Rapporteur</i>
Bidault S.	Chargé de recherche CNRS, Paris	<i>Examineur</i>
Hertz E.	Maître de conférence, Univ. Bourgogne	<i>Examineur</i>
Marquier F.	Maître de conférence, Univ. Paris	<i>Examineur</i>
Bouhelier A.	Chargé de recherche CNRS, Univ. Bourgogne	<i>Co-directeur de thèse</i>
Dereux A.	Professeur, Univ. Bourgogne	<i>Co-directeur de thèse</i>

Remerciements

Je tiens à remercier mes directeurs de thèse Alain Dereux et Alexandre Bouhelier pour m'avoir encadré durant ses 3 années de thèses. Ils ont toujours été présents pour m'aider quand il le fallait et m'orienter dans les bonnes directions. Je suis particulièrement reconnaissant envers Alexandre Bouhelier car je pense avoir énormément appris à son contact et je n'en serai pas là sans son aide et ses précieux conseils. j'ai énormément d'estime pour lui et je tiens à lui témoigner mes remerciements les plus sincères.

Mes remerciements vont également à Gérard Colas des Francs, qui a toujours été présents pour m'aider tout au long de ses trois années, autant sur le plan théorique que personnel. Je lui suis reconnaissant pour tout le temps qu'il m'a consacré.

Je remercie aussi Jean-Claude Weeber pour son aide sur les simulations numériques ainsi que sa participation dans l'interprétation des résultats expérimentaux obtenus.

Je tiens à saluer Laurent Markey, Juan Arocas pour m'avoir fait bénéficier de leurs expériences respectives au niveau des procédés de fabrication.

Je souhaite adresser mes remerciements à Maria Allegrini, Francois Marquier, Sébastien Bidault, Edouard Hertz, Christian Girard et Pierre-Francois Brevet pour m'avoir fait l'honneur d'être membres du jury lors de ma soutenance de thèse. Je remercie plus particulièrement Christian Girard et Pierre François Brevet qui ont accepté d'être les rapporteurs de ce manuscrit.

Je remercie également Antonin, Karim, Caijin, Stéphane, Mingxia, Thibault, Simon, Rémi, Padmnabh, Jérémie, Camille qui m'ont supporté pendant trois ans. Merci les gars sans vous je pense que je me serai bien ennuyé.

Je conclurai ces remerciements par ceux que j'adresse à ma famille et pour leur soutien et l'intérêt qu'ils ont portés à mes études. Je suis également reconnaissant envers Yves et Michèle Artur pour m'avoir soutenu et organisé un magnifique pot de thèse.

Résumé

Les nano-antennes optiques constituent un élément clé pour le contrôle et l'interaction lumière/matière à l'échelle nanométrique. Ces systèmes opèrent dans le domaine de l'optique visible et proche infrarouge. Les propriétés de ces composants sont contrôlées en modifiant la taille, la forme et le matériau utilisé. Ces paramètres sont ajustés par les processus de fabrication de l'antenne.

Dans le domaine des radio-fréquences, le tuner permet d'ajuster la fréquence de résonance de l'antenne de façon dynamique. Nous avons dans le cadre de cette thèse voulu adapter ce concept de tuner au domaine de l'optique. Le principe employé consiste à changer la résistance de charge de l'antenne, c'est-à-dire l'indice du milieu diélectrique environnant. Pour cela, nous avons utilisé un matériau anisotrope constitué de molécules de cristaux liquides. L'indice optique est alors modifié par l'application d'un champ électrique statique. Le changement des propriétés spectrales ainsi que de diffusion d'une antenne de type dimère sont ici démontrées.

Toujours en analogie avec les antennes radio-fréquences, nous avons étudié la propriété de transduction électron-photon dans le cas des antennes optiques. Dans ce but, nous avons considéré deux configurations. La première concerne l'utilisation de nanotubes de carbone placés dans une configuration de transistor à effet de champ. Ces objets émettent de la lumière par une recombinaison de paires électrons-trous dans le domaine des longueurs d'ondes Télécom. La seconde configuration emploie des jonctions tunnels fabriquées par électro-migration. Dans ce cas là, la jonction est assimilée à une antenne à interstice. A cause des faibles dimensions des jonctions (autour de 1 nm), nous nous sommes intéressés à la réponse en optique non linéaire de ses objets. Cette technique permet de localiser la jonction tunnel grâce à une forte exaltation du signal. L'étude des différentes caractéristiques de ses jonctions sont ici présentées.

Une fois la transduction du signal réalisée par l'antenne radiofréquence, celui-ci est acheminé via une ligne de transmission. A l'échelle nanométrique, les guides plasmoniques s'avèrent être un type de structure approprié. Dans ce cas, les guides peuvent à la fois servir d'électrode mais aussi de guide. Dans le cadre de cette thèse, nous avons étudié par microscopie à fuites radiatives, dans l'espace directe et réciproque, la plus simple des géométries : le guide ruban métallique. Nous avons cherché à comprendre, pourquoi ce type de structure présente une largeur de coupure.

Mots clés : Antenne optique, Cristaux liquides, Génération de seconde harmonique, Nanotubes de carbone, Electroluminescence, Plasmonique, Tuner optique, Electro-migration, Jonction tunnel, Rectification optique, Microscopie à fuites radiatives, Nanofabrication.

Abstract

Optical nano-antennae are the new class of components to control light/matter interaction at the nanoscale. These devices are operating in the visible to near infrared part of the spectrum. The properties of these nano objects are controlled by the form, the size and the material.

In the radio frequency domain, the tuner changes dynamically the operating wavelength of the antenna. In this thesis work, we search to transfer this concept to the nanoscale. The principle is to change the load impedance of the antenna, i.e. changing the optical index of the dielectric medium around the nano-object. For that we used anisotropic liquid crystal molecules. The value of the optical index is controlled by applying an external electrical static field. The effects on the spectral and scattering properties are demonstrated on a single dimer nano-antenna.

However with the microwave antennae, we were interesting to the electrons-photons transduction with an optical antenna. In this mind, we studied two different configurations. The first one concerns the use of carbon nanotubes placed in a field effect transistor configuration. These nano-objects emit light in the Telecom wavelength range by a radiative combination of electrons and holes. the second configuration used planar tunnel junctions made by electromigration. In this case, the junctions are view as an optical gap antenna. Because the gap are very small (around 1 nm), we have studied the nonlinear optical response of these objects. This nonlinear optical characterization allows to determined the location of the tunnel junctions by an enhancement of the optical signal. The results about the properties (electrical and optical) of these tunnel junctions are presented.

Once the transduction by the radio frequency antenna is achieved, this signal is transporting by a transmission line. By transposition at the nanoscale, the plasmonics waveguides prove to be the most appropriate structure. In this case, they could be used as an electrode or a waveguide. In this thesis work, we have studied by leakage radiation microscopy, in the direct and reciprocal space, the simplest geometry : plasmonic metal strips. We search to understand why these structures have a cut-off width.

Key words : Optical antenna, Liquid cristal, Second harmonic generation, Carbon nanotubes, Electroluminescence, Plasmonic, Optical tuner, Electromigration, Tunnel junction, Optical rectification, Leakage radiation microscopy.

Table des matières

Remerciements	i
Résumé	iii
Abstract	v
Introduction générale	1
I Contrôle électrique d'une antenne optique unique	3
1 Introduction sur les antennes optiques	5
1.1 Résonance plasmon de surface localisée	7
1.2 Contrôle des propriétés d'une antenne optique	8
1.3 Motivations	10
2 Réalisation expérimentale d'une cellule à cristaux liquides	11
2.1 Système de mesure : microscopie hyper-spectrale en champ sombre . .	11
2.2 Présentation des cristaux liquides nématiques	14
2.3 Description de l'échantillon	14
3 Contrôle électrique de la résonance plasmon d'une antenne optique	19
3.1 Influence de la cellule sur le trajet lumineux	19
3.2 Etude en polarisation du changement de la résonance plasmon d'une particule unique	23
3.3 Etude en polarisation du changement de la résonance plasmon de deux particules couplées (dimère)	25
3.4 Pour résumer	28
4 Réalisation d'un tuner optique	31
4.1 Système de caractérisation	31
4.2 Le tuner optique	32
5 Conclusion	35
Bibliographie	37

II	Nano-sources à plasmon pilotées électriquement	41
6	Introduction	43
7	Transistor à effet de champ avec un nanotube de carbone (CNFET)	45
7.1	Les nanotubes de carbone : propriétés électriques et optiques	46
7.2	Electro-luminescence	49
7.3	Réalisation expérimentale et mesures électriques d'un nanotube unique	50
7.4	Réalisation et mesure électrique d'un CNFET	54
8	Création de jonction sub-nanométrique par électromigration	57
8.1	Création de jonctions nanométriques par électro-migration	58
8.2	Processus d'électro-migration	58
8.3	Fabrication de jonctions nanométriques	59
8.4	Caractérisation électrique des nano-jonctions	62
9	Caractérisation optique des jonctions électro-migrées par génération de second harmonique	71
9.1	Génération de second harmonique	71
9.2	Système de caractérisation	72
9.3	Caractérisation non linéaire des jonctions.	74
9.4	Exaltation SHG vs distance inter-électrode	77
10	Réalisation d'un transducteur électro-plasmonique : résultats préliminaires	83
10.1	Conversion électron/photon via l'émission d'un plasmon de surface . .	83
10.1.1	Génération de lumière tunnel avec des jonctions électro-migrées.	84
10.1.2	Stabilité de l'émission lumineuse	85
10.2	Conversion photons/électrons : via excitation d'un plasmon de surface	87
11	Conclusion et perspectives	91
	Bibliographie	93
III	Guidage et focalisation d'un plasmon de surface	101
12	Introduction	103
12.1	Motivations	104
12.2	Les plasmons de surface délocalisés	105
12.3	Confinement et guidage des SPPs	107
12.3.1	Les nano-fils	107
12.3.2	Les guides rubans	107
12.3.3	Autres structures guidantes	109

13	Microscopie à fuites radiatives et outils numériques	111
13.1	Les fuites radiatives	111
13.2	Utilisation d'un objectif à immersion pour l'excitation d'un plasmon de surface	112
13.3	Le système de caractérisation	113
13.4	Imagerie de Fourier	115
13.5	Présentation des différentes méthodes numériques utilisées	119
13.5.1	La méthode différentielle	119
13.5.2	La méthode des éléments finis : utilisation de Comsol	121
14	Interaction d'un plasmon de surface avec un bord métallique	123
14.1	Présentation du phénomène	124
14.2	Influence de la polarisation incidente et analyse des composantes de l'onde 1D d'arête.	129
14.3	Structuration, influence du milieu diélectrique : quels effets sur l'onde 1D?	131
14.4	Confirmation de la diffraction du plasmon en une onde unidimensionnelle	137
15	Etude de la propagation d'un plasmon de surface dans des guides rubans métalliques	143
15.1	Origine de la largeur de coupure dans les guides rubans.	144
15.2	Focalisation d'un plasmon de surface	149
16	Conclusion	153
	Bibliographie	155
	Conclusion générale	159
	Annexe	161
A	Méthodes de Fabrication	163
A.1	Principe de fabrication	163
A.2	Lithographie UV en mode contact	164
A.3	Lithographie par faisceau d'électron	165
A.4	Lithographie par faisceau d'électron multi-niveaux	167
	Liste de Publications	175

Introduction générale

La plasmonique représente une candidate prometteuse pour le développement de nouveaux composants. Ce nouveau domaine tire parti d'un haut confinement de la lumière ainsi que d'une vitesse de commutation élevée. Les plasmons de surfaces naissent du couplage entre une oscillation collective du gaz d'électron libre d'un métal et d'un photon. De part sa dualité électron-photon, le développement de composants électro-optiques paraît être une solution adaptée à la plasmonique. Dans cette optique, il est nécessaire de posséder des systèmes de contrôle et d'excitation intégrés pour les plasmons de surfaces. La récente notion d'antenne optique s'impose comme un point clé dans ce développement. Ces objets de tailles nanométriques ont la faculté de localiser et contrôler une onde électromagnétique. Malgré le fait que ces structures soient considérées comme passives, l'incorporation de ceux-ci dans une architecture électronique ou en contact avec des milieux actifs permet de contrôler leurs propriétés dynamiquement. Dans le cadre de cette thèse nous nous sommes intéressés au développement de composants électro-optiques à bases de nano-antennes permettant un contrôle ainsi que l'excitation de plasmons de surfaces.

Ce manuscrit de thèse est divisé en trois parties. La première concerne le contrôle des propriétés spectrales et de diffusion d'une antenne optique. Dans ce but, nous avons utilisé un milieu anisotrope contrôlable électriquement. La réalisation d'un tel système ainsi que les mesures effectuées sont discutées dans cette partie. Cette configuration nous conduira même à l'obtention d'un tuner optique. Lors d'une seconde partie, nous avons choisis d'utiliser des nano-antennes comme source de lumière. Dans cette optique nous avons sélectionné deux configurations : la première est basée sur l'utilisation de jonctions tunnels, alors que la seconde sur l'utilisation de nanotubes de carbones. Nous détaillerons au cours de cette partie, les méthodes de fabrications et de caractérisation utilisées. Dans le cas des jonctions tunnels, nous montrerons des résultats préliminaires sur l'obtention d'un transducteur électro-optique complet. Finalement dans une troisième et dernière partie, nous traiterons des plasmons de surface propagatif. Cette partie est assez différente des deux premières dans le sens où il n'y a pas d'antenne optique. Notre idée, en réalisant cette étude est d'utiliser ces guides plasmoniques comme structures pour délocaliser l'émission lumineuse des sources électroluminescentes fabriquées lors de la seconde partie. Au cours de notre étude, nous nous sommes aperçus de l'existence d'une onde évanescente unidimensionnelle présente sur les bords de ses guides. Nous développerons dans cette partie, les résultats obtenus ainsi que les différentes expériences nous permettant d'identifier les origines de cette nouvelle onde. Nous montrerons pourquoi cette onde n'a pu être identifiée ainsi que son rôle dans la largeur de coupure des guides plasmoniques.

Première partie

Contrôle électrique d'une antenne optique unique

Chapitre 1

Introduction sur les antennes optiques

Sommaire

1.1	Résonance plasmon de surface localisée	7
1.2	Contrôle des propriétés d'une antenne optique	8
1.3	Motivations	10

Depuis la fin du 19ème siècle, les antennes n'ont cessé d'être optimisées dans le but d'améliorer le transfert de l'information. Ces systèmes basés sur le contrôle des ondes électromagnétiques dans le régime des micro-ondes et radiofréquences sont actuellement très utilisés dans les moyens de télécommunications (téléphone portable, télévision, Internet). Généralement dans ces domaines, celles-ci ont des dimensions 100 fois plus petites que la longueur d'onde utilisée [1]. Une antenne est définie comme étant un système capable de rayonner (émetteur) et de capter (récepteur) une onde électromagnétique. Elles fonctionnent sur le principe de la transduction, c'est-à-dire la transformation d'une onde électromagnétique en un courant électrique oscillant à la même fréquence et vice-versa.

Avec la miniaturisation des composants et l'utilisation de photons en complément des électrons, il va être nécessaire de transposer des concepts tels que la transmission sans fil aux longueurs d'ondes Télécom. Dans le domaine des télécommunications optiques, le signal est guidé physiquement d'un point à un autre par un guide d'onde. La transposition du concept de transmission sans fil a donné naissance aux antennes optiques.

Historiquement, celles-ci ont été développées pour la microscopie en champ proche [2]. La première suggestion concernant l'utilisation d'antennes optiques viendra de Edward Hutchinson Synge en 1928 [3]. Son idée consistait à utiliser la lumière diffusée par de petits objets afin d'augmenter la résolution. Le terme d'antenne ne sera utilisé pour décrire une nano particule métallique qu'à partir des années 1985

[4]. La taille de ces objets nécessitant d'atteindre des résolutions de l'ordre de la dizaine de nanomètres, il faudra attendre 1995 pour voir la première réalisation expérimentale [5]. L'antenne consistait alors en une bille de polystyrène de 90 nm de diamètre recouverte par une couche de 20 nm d'or. Au début, les antennes optiques ont donc été fabriquées ou attachées au bout d'une sonde de champ proche [6, 7, 8], dans le but d'exalter la fluorescence d'émetteurs quantiques. Une antenne optique reste à l'heure actuelle partiellement définie. Cependant, plusieurs caractéristiques sont nécessaires pour les définir. Bharadwaj et ses collègues ont proposé de définir une antenne optique comme un composant capable de **convertir**, **localiser** et **diriger** efficacement une onde électromagnétique et vice-versa [9]. La lumière est difficilement localisée dans des zones sub-longueur d'onde, à l'exception des plasmons de surface portés par des structures métalliques. C'est pourquoi, la plupart des antennes optiques sont formées de l'assemblage d'une ou plusieurs nano particules métalliques. Celles-ci supportent des modes "plasmons de surface localisés". Cette particularité leur confère la propriété de confiner et d'exalter très localement un champ électromagnétique.

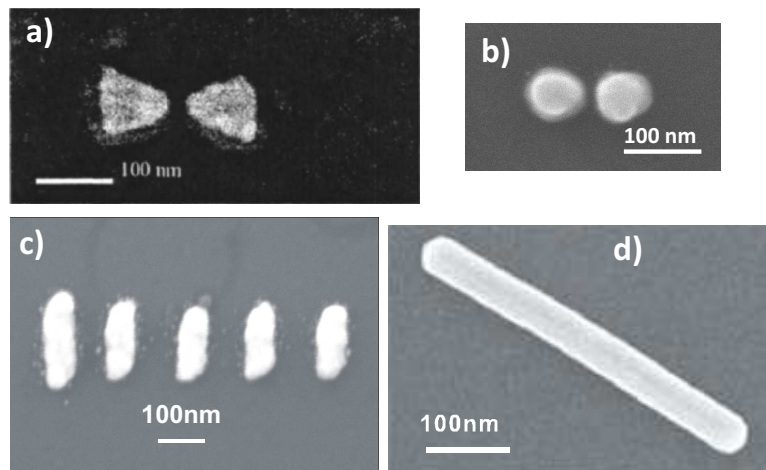


FIGURE 1.1 – Différentes géométries d'antennes optiques réalisées par lithographie à faisceau d'électron et croissance cristalline : a) bow-tie [10], b) nano particules couplées (fabrication au laboratoire), c) Yagi-Uda (fabrication au laboratoire), d) bâtonnet [11]

Sur la figure 1.1 sont représentées différentes antennes. La fabrication ainsi que la forme, la taille et le matériau permettent de changer les caractéristiques plasmoniques des antennes. Par exemple dans le cas de particules couplées (cf. figure 1.1 (a-b)), celles-ci sont souvent utilisées comme capteurs. La zone d'espace libre (ou gap) entre les deux particules conduit à la création d'une forte exaltation du champ électromagnétique [12] contrairement à une antenne micro-onde. Ce phénomène souvent appelé "point chaud" est très utilisé dans le cadre de la spectroscopie Raman. Un autre exemple est donné par les antennes Yagi-Uda (cf. figure 1.1 (c)). Celles-ci sont utilisées pour leur capacité directionnelle [13, 14, 15]. Ce type d'antenne est composée de trois éléments : la source, le réflecteur, et les directeurs. L'interaction entre les différents composants conduit à une réorientation de la lumière diffusée par l'antenne suivant l'axe des directeurs. Un autre type d'antenne sont les bâtonnets

(cf. figure 1.1 (d)). Grâce à leur forme allongée, ils sont capables de guider un mode plasmon de surface. Il est aussi possible de propager l'information en formant des guides par l'assemblage de nano-particules en chaîne [16]. Toutes ces différentes formes, ainsi que ces différentes capacités, constituent un vaste champ de recherche et de possibilités.

De nos jours, les antennes optiques sont intensivement utilisées dans divers domaines. Elles servent par exemple dans le traitement du cancer [17, 18]. Dans ce cas, des nano particules fonctionnalisées se déposent sur des tumeurs cancéreuses et sont ensuite excitées optiquement par une onde dans le proche infrarouge. Le confinement du champ produit une élévation locale de la température permettant la destruction des cellules cancéreuses. Les antennes sont aussi utilisées comme capteurs pour la biologie [19, 20, 21]. L'intérêt est alors porté sur le décalage de la résonance plasmon des particules en fonction des espèces sondées. Finalement, ces antennes métalliques sont aussi incorporées dans des composants pour la photonique (Laser [22], cellules photovoltaïques [23], capteurs [24, 25] etc.). Dans ce type de configuration les antennes sont utilisées pour amplifier ou ajouter une fonctionnalité à un composant déjà existant. C'est dans cette optique que nous comptons employer des nano antennes.

1.1 Résonance plasmon de surface localisée

Depuis leurs découvertes en 1957 par R. Ritchie [26], les plasmons de surface ont suscité un grand intérêt. Ceux-ci sont le résultat du couplage entre l'oscillation collective du gaz d'électrons libres d'un métal et un photon [27, 28]. Ces modes plasmons sont distinguables en deux familles : les plasmons localisés et les plasmons délocalisés. Dans cette partie nous traiterons uniquement du cas localisé. Dans le cas où le gaz d'électrons libres d'un nano objet est résonant avec une excitation externe, il se produit une forte exaltation du champ diffusé. C'est la *résonance plasmon de surface localisée*. Cette résonance est dépendante de la taille de l'objet, de la forme ainsi que de l'indice du milieu environnant [29, 30, 31]. Le dipôle volumique induit dans le cas d'une sphère de rayon r placée dans un champ $\mathbf{E}_0(\omega)$ s'écrit sous la forme :

$$\mathbf{P}(\omega) = \alpha \epsilon_d \mathbf{E}_0(\omega) \quad (1.1)$$

Avec α la polarisabilité telle que :

$$\alpha = 4\pi\epsilon_0 r^3 \frac{\epsilon_m(\omega) - \epsilon_d}{\epsilon_m(\omega) + 2\epsilon_d} \quad (1.2)$$

ϵ_d et ϵ_m sont les constantes diélectriques respectivement du milieu et du métal. La condition de résonance plasmon est obtenue lorsque :

$$\Re(\epsilon_m(\omega) + 2\epsilon_d) = 0 \quad (1.3)$$

Pour des nano particules en or, la longueur d'onde de résonance se situe dans la partie verte du spectre visible. Il existe une relation plus générale permettant

de déterminer l'expression du dipôle volumique induit pour des sphéroïdes. Seule l'expression de la polarisabilité " α " est changée :

$$\alpha_i = \frac{4}{3}\epsilon_0\pi abc \frac{\epsilon_m - \epsilon_d}{\epsilon_d + L_i(\epsilon_m - \epsilon_d)}, \sum_{i=1}^3 L_i = 1 \quad (1.4)$$

Avec a , b , c représentant les demi axes liés respectivement aux axes x , y , z permettant de décrire la structure et L_i le facteur de dépolariation le long des axes principaux x , y , z . A partir de cette équation générale, il est possible de retrouver la polarisabilité d'une sphère en prenant $L_1 = L_2 = L_3 = 1/3$ et $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha_3 = \alpha$. Pour des tailles inférieures à 100 nm pour l'or, la résonance plasmon est gouvernée par le mode dipolaire. Au delà de cette taille, des modes de résonance d'ordre supérieurs peuvent apparaître et sont liés à des effets de retards dans l'oscillation collective du gaz d'électron. Dans ce cas là, la résonance dipolaire est décalée vers le rouge alors que les ordres de résonances supérieurs sont à des longueurs d'ondes plus faibles [32].

1.2 Contrôle des propriétés d'une antenne optique

Les antennes optiques sont généralement considérées comme des composants passifs. Leurs propriétés sont en effet définies par le processus de fabrication (taille, forme, matériau). Il existe différentes méthodes pour contrôler la résonance plasmon d'une antenne. L'intensité diffusée est directement liée à la longueur d'onde de résonance. Comme le montre la figure 1.2, en fonction de la longueur d'onde d'excitation l'antenne est excitée à sa résonance (a) ou hors résonance (b). Il est alors possible de définir deux états pour une antenne optique : un état "on" et un état "off". Lorsque l'antenne sera dans un état "on", cela signifiera qu'elle est excitée à sa longueur d'onde de résonance. L'ajustement de l'excitation autorise donc un contrôle sur l'intensité diffusée par une antenne [33].

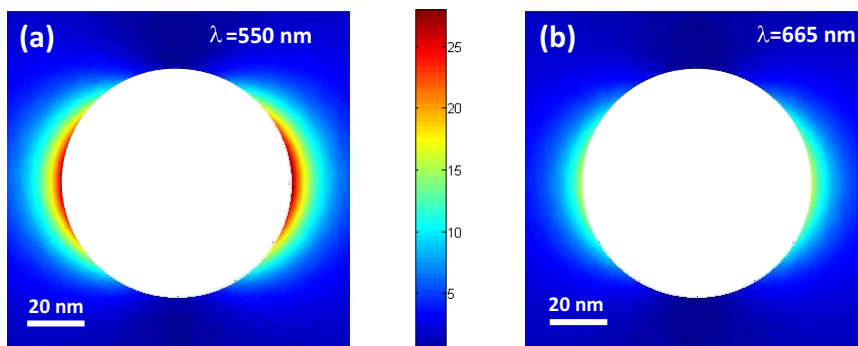


FIGURE 1.2 – Intensité du champ diffusée par une sphère en or de 40 nm de diamètre pour deux longueurs d'onde différentes. La cartographie a été réalisée grâce à la théorie de Mie [34].

Dans le domaine des micro-ondes, l'antenne dipolaire (constituée de deux bras de longueur L légèrement espacés) voit sa fréquence de résonance changer lorsque la dimension de ses bras change. La transposition de l'antenne dipolaire dans le domaine de l'optique correspond à deux particules couplées. Il est alors possible de modifier deux paramètres pour changer la longueur d'onde de résonance de l'antenne. Au même titre que pour l'antenne dipolaire, un changement de taille des particules pour une distance de couplage fixée permet de décaler la résonance de l'antenne. Néanmoins, dans le cas d'antennes optiques la zone de couplage est sujette à une forte exaltation de champ. Cette différence permet d'ajouter un degré de liberté au système. Il est donc possible de modifier le comportement de l'antenne simplement en changeant la distance de couplage. Cette modification a été montrée expérimentalement et théoriquement [10, 33, 35, 36, 37]. Une diminution de la distance d'interaction conduit à un décalage de la résonance de l'antenne vers le rouge. Des techniques par action mécanique [38, 39], ou en utilisant des molécules d'ADN [40] ont permis de contrôler cette distance de couplage in situ. Récemment une approche générale inspirée de l'adaptation d'impédance en électronique, a été proposée pour le domaine optique.

Pour des antennes radiofréquences, cet ajustement de fréquence opérationnel (ou de longueur d'onde) est réalisé à partir d'un tuner. Cet élément peut être décrit comme un circuit RLC dont l'élément capacitif est variable. De récents travaux ont permis de trouver les équivalents pour les différents constituants d'une antenne optique [41, 42]. Dans ces études, l'antenne considérée est constituée de deux particules métalliques en interaction avec une faible distance d'interaction (gap). Un matériau est défini par sa constante diélectrique ϵ qui peut être réelle (air, verre etc.) ou complexe (métaux). La définition de ces équivalents en optique est présentée sur la figure 1.3. Une résistance est donc représentée en optique par un matériau avec $Im(\epsilon) < 0$, une inductance est elle reproduite par $Re(\epsilon) < 0$ et enfin une capacité par $Re(\epsilon) > 0$. Grâce à ces équivalents, il est facile de schématiser une antenne optique métallique. La partie inductive ainsi que résistive sont incarnées par le métal, alors que la capacité est en fait le milieu d'interaction de l'antenne. De ce fait, réaliser un tuner optique revient donc à ajuster la capacité ou, plus exactement dans le cas d'une antenne optique, l'indice du milieu de la zone de couplage de deux particules.

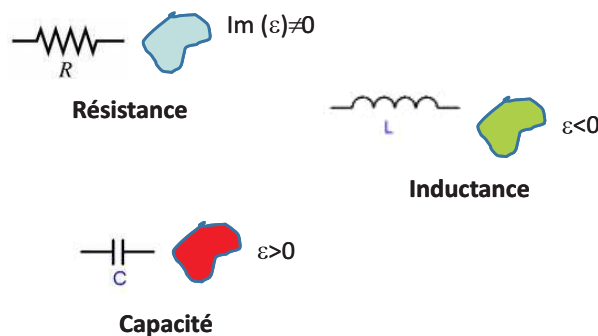


FIGURE 1.3 – Représentation schématique des équivalents en optique d'une inductance, une capacité et une résistance.

Le contrôle de la résonance plasmon en changeant l'indice du milieu diélectrique par une commande électrique externe a déjà été démontré expérimentalement. Différents matériaux comme des polymères électrochimiques [43], des molécules bistables [44], où des cristaux liquides [45, 46, 47] ont montré la réversibilité ainsi que le changement de la longueur d'onde de résonance sur des antennes optiques. Cependant, dans toutes ses expériences les auteurs n'ont considéré qu'une particule isolée ou un ensemble et ne sont pas intéressés à l'influence du milieu sur l'interaction entre deux particules couplées.

1.3 Motivations

Dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi de réaliser un tuner optique. Nous avons décidé d'employer la technique de la capacité variable en utilisant un milieu contrôlable électriquement. Notre choix s'est orienté sur les cristaux liquides. Ce matériau a la particularité d'être biréfringent. Cette anisotropie d'indice est contrôlable par l'application d'un champ électrique entre deux électrodes. Il existe plusieurs type de cristaux liquides, ou plus exactement plusieurs phases (nématique, cholestérique, smectique). La différence entre ses phases est l'alignement ainsi que l'arrangement des molécules du cristal liquide. Notre choix s'est porté sur la phase nématique. Celle-ci possède l'alignement moléculaire le plus simple et le plus facile à déterminer. Les résultats concernant le contrôle ainsi que les propriétés de diffusion d'une antenne optique unique sont discutés dans cette partie. Le premier chapitre décrit l'échantillon utilisé ainsi que la technique de caractérisation. Dans un second chapitre, nous présentons les résultats obtenus sur le contrôle des propriétés spectrales d'une antenne optique unique. Enfin, le dernier chapitre de cette partie est consacré à une utilisation de notre composant comme un tuner optique. Nous montrerons que l'influence des cristaux liquides impacte directement les propriétés de diffusion optique d'une nano antenne.

Chapitre 2

Réalisation expérimentale d'une cellule à cristaux liquides

Sommaire

2.1	Système de mesure : microscopie hyper-spectrale en champ sombre . . .	11
2.2	Présentation des cristaux liquides nématiques	14
2.3	Description de l'échantillon	14

La caractérisation optique de nano antennes est très difficile de par leurs faibles sections efficaces de diffusion ($\sigma \approx 10^{-15} \text{ cm}^2$). Cependant il existe différentes techniques de microscopies permettant leur observation. Notre choix s'est orienté vers la microscopie confocale et la microscopie en champ sombre. Cette dernière, couplée à un spectromètre, permet d'obtenir la longueur d'onde de résonance des nano particules [48]. Dans ce chapitre nous présenterons les outils utilisés pour caractériser et fabriquer l'échantillon développé pour cette étude.

2.1 Système de mesure : microscopie hyper-spectrale en champ sombre

La microscopie en champ sombre est une technique très efficace pour observer des nano particules [48]. Celle-ci est basée sur la collection de la lumière déviée par de petits objets. Ceci a pour but de produire une image sur fond noir ou seule la lumière déviée devient visible. Ce type d'excitation est possible grâce à un condenseur muni d'un filtre spatial. Seul les angles définis par une ouverture numérique supérieure à celle de l'objectif de collection sont autorisés à exciter l'échantillon. La collection du signal n'est alors possible que pour des rayons lumineux ayant été déviés par un objet. La représentation schématique du microscope utilisé est présentée sur la figure

2.1. Nous utilisons un microscope inversé de la marque Nikon (TE2000) comme base. L'excitation est réalisée par un éclairage diascopique à fond noir grâce à une lumière blanche et un condenseur. Celui-ci possède une ouverture numérique comprise entre 0.85 et 0.95. La polarisation de la lumière est contrôlée par un polariseur situé entre le condenseur et la source. Le signal lumineux est ensuite collecté avec un objectif possédant une ouverture numérique de $O.N.=0.60$. Cette lumière est focalisée sur le capteur d'une caméra CCD d'un spectromètre à réseau imageur. Contrairement à un spectromètre classique, nous avons accès simultanément à une information spectrale et spatiale. Avec ce système, il est possible d'enregistrer une intensité diffusée fonction à la fois d'une position et de la longueur d'onde ($I(x, \lambda)$), c'est-à-dire une image hyper-spectrale.

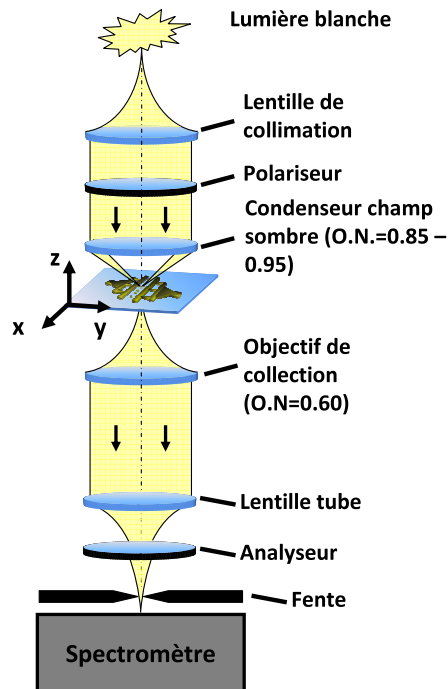


FIGURE 2.1 – Représentation schématique du microscope à champ sombre utilisé. La lumière est focalisée à l'aide d'un condenseur avec une ouverture numérique comprise entre 0.85 et 0.95. La lumière diffusée est collectée par un objectif avec une faible ouverture numérique $O.N.=0.65$. La lumière est ensuite focalisée dans un spectromètre à réseau.

Le fonctionnement d'un tel type de spectromètre est expliqué à l'aide de la figure 2.2. Lorsque la lumière incidente n'est pas décomposée par le réseau, ce dernier se comporte comme un miroir, et la caméra CCD donne une image champ sombre de l'échantillon (cf. figure 2.2 (a)). Dans ce cas présent, il s'agit de nano particules métalliques (rectangle en pointillés blancs) placées entre deux électrodes métalliques. Une image par microscopie à balayage de la même zone est reproduite en haut à gauche. Cependant, l'intensité diffusée par les électrodes est beaucoup plus intense

que celui des antennes. Afin de discriminer le signal des électrodes de celui des nano antennes, le spectromètre est équipé d'un diaphragme situé à l'entrée de l'appareil. L'ajustement de l'ouverture de ce dernier permet de ne sélectionner que le signal provenant des nano antennes (cf. figure 2.2 (b)). Une fois la zone d'observation centrée et le diaphragme ajusté, la position angulaire du réseau est modifiée de sorte à décomposer la lumière incidente. L'image obtenue dans cette configuration est donnée par la figure 2.2 (c). Comme le montre les flèches en pointillés gris, chaque ligne de signal sur l'image correspond à une nano antenne. Nous avons donc accès à une information spatiale ainsi qu'aux spectres de diffusion des antennes (cf. figure 2.2 (d)).

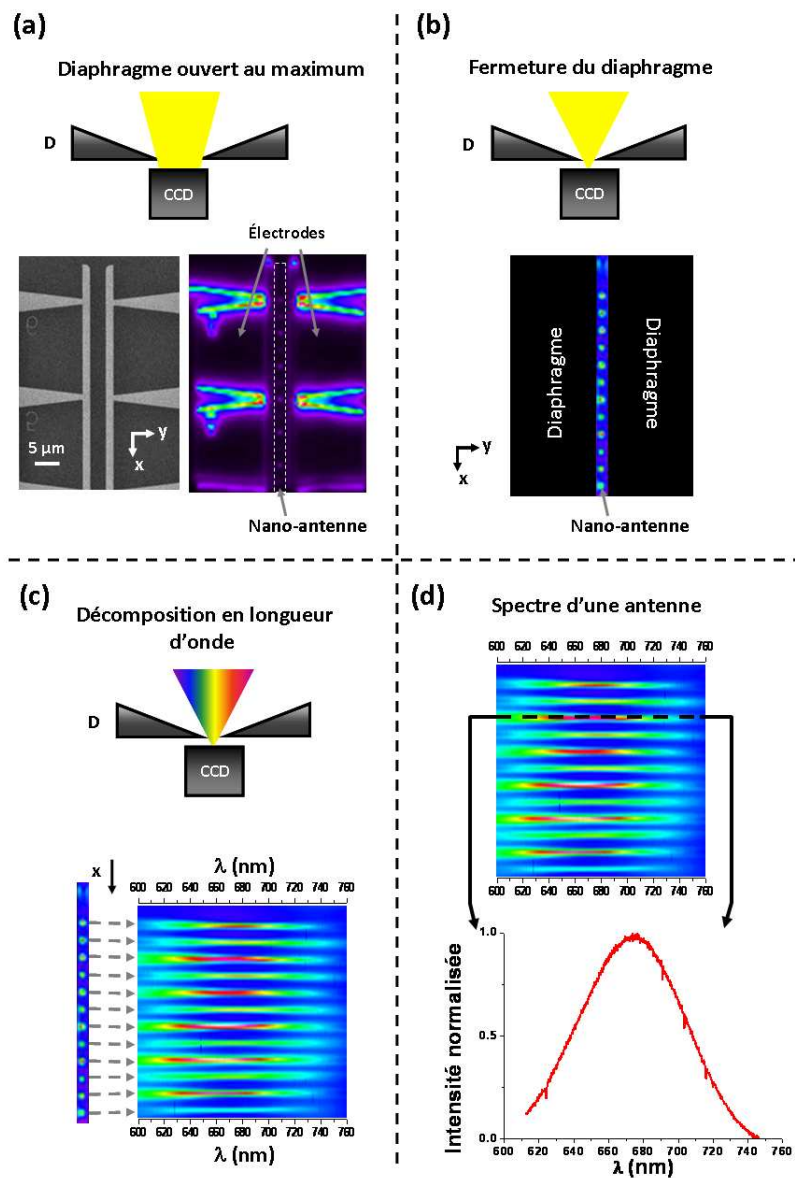


FIGURE 2.2 – Représentation schématique de la méthode d'imagerie hyperspectrale.

2.2 Présentation des cristaux liquides nématiques

Un cristal liquide est un état particulier de la matière. Il combine à la fois les propriétés d'un liquide ainsi que celles d'un solide cristallisé. Le terme "nématique" (du grec *nêmatos* qui signifie fil) correspond à la phase du cristal. Les molécules présentes dans un cristal liquide nématique sont alignées les unes par rapport aux autres. Cette orientation moyenne est appelée le directeur (cf. image 2.3 (a)). Les cristaux liquides sont des matériaux biréfringents caractérisés par un indice ordinaire (n_o) et un indice extraordinaire (n_e). Dans le cas du cristal liquide utilisé pour notre étude, la biréfringence est positive $\Delta n = 0.2179$ ($n_o = 1.521$ et $n_e = 1.746$ à $\lambda = 589$ nm pour $T = 20^\circ C$ [49]).

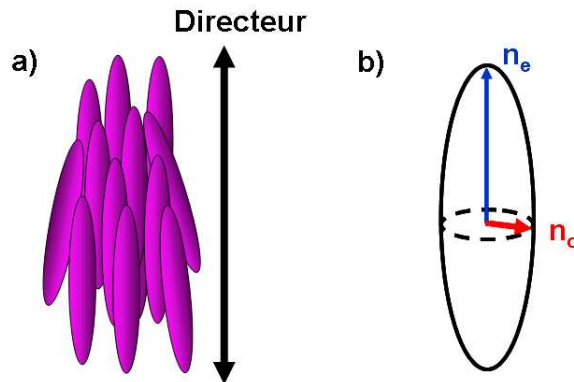


FIGURE 2.3 – a) Représentation de l'alignement des molécules défini comme le directeur dans le cas d'un cristal liquide en phase nématique, b) représentation schématique de l'ellipsoïdes des indices (n_o et n_e) pour un cristal liquide nématique.

Les cristaux liquides ont aussi la particularité de changer l'orientation de leur directeur sous l'application d'un champ électrique. Cet effet n'est possible qu'à partir d'une tension de seuil. Cette zone de transition est appelée la transition de Fréedericksz [50]. La rotation des molécules est dépendante de la force du champ appliquée. A cause du changement d'orientation de ces dernières, la polarisation d'un faisceau lumineux traversant ce milieu est aussi affectée. Cet effet est aussi connu sous le nom de théorème de Mauguin. Celui-ci stipule que lorsqu'un faisceau polarisé traverse une cellule à cristaux liquides, la polarisation de la lumière incidente est modifiée afin d'être alignée avec le directeur. Cet effet est très utilisé dans les écrans à cristaux liquides notamment.

La combinaison de ces deux propriétés (indice et polarisation) fait des cristaux liquides un choix adapté pour représenter une capacité variable. L'ajout de ce milieu contrôlable électriquement va permettre de modifier les propriétés spectrales d'une antenne optique.

2.3 Description de l'échantillon

Cette étude a nécessité la réalisation d'une cellule contenant des antennes optiques immergées dans des cristaux liquides. Pour cela, plusieurs étapes de fabrica-

tion ont été nécessaires. Pour contrôler l'orientation des molécules, il a été choisi de fabriquer des électrodes planaires. Cette configuration est d'une part adaptée à notre système de caractérisation optique, et d'autre part, la position des électrodes permet d'obtenir une orientation finale des molécules du cristal liquide parallèles à la surface de l'échantillon. Nous espérons avoir avec cette configuration des valeurs d'indice optique effectifs telles que $n_{eff}^{optique} = \alpha n_e + \beta n_0$, où $\alpha + \beta = 1$ et sont dépendants à la fois de l'amplitude et de la direction du champ appliqué.

La réalisation des antennes ainsi que les électrodes ont nécessité deux étapes différentes de lithographie. La première a permis de réaliser des électrodes macroscopiques en or. Celles-ci ont été fabriquées grâce à une lithographie UV en mode contact. Après avoir insolé et développé le motif des électrodes, l'échantillon est introduit dans un évaporateur où 100 nm d'or ont été évaporés à une vitesse de 0.1 nm/s sous une pression de 1×10^{-7} mbar (cf. figure 2.4 (a)).

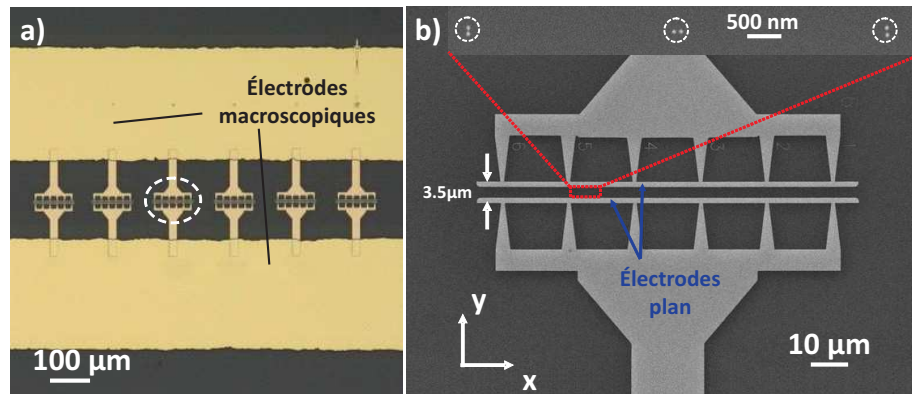


FIGURE 2.4 – a) Image optique de l'échantillon final avec en indication sur l'image les électrodes macroscopiques en or créées par lithographie UV. b) Image MEB correspondant à la zone repérée par le cercle blanc dans (a). Les électrodes sont séparées d'une distance de $3.5 \mu\text{m}$. Les antennes sont constituées de deux nano disques (dimère) couplés situées au milieu des deux électrodes. Un zoom dans le rectangle rouge a été effectué afin de vérifier leur présence. Celui-ci est représenté en haut de l'image. Les antennes sont repérées à l'intérieur des cercles blancs. Le diamètre des particules est d'environ 70 nm avec une épaisseur de 40 nm.

La seconde étape de lithographie a permis de créer des électrodes microscopiques raccordées aux électrodes macroscopiques ainsi que la fabrication des antennes optiques. Cette étape a été réalisée en collaboration avec le laboratoire de nanotechnologie et d'instrumentation optique (LNIO) de l'université technologique de Troyes. Le résultat final est présenté sur la figure 2.4 (b). Dans le cadre de cette thèse nous avons travaillé avec des antennes couplées. Celles-ci sont constituées de deux nano disques (dimère), disposées au centre de deux électrodes planaires distantes de $3.5 \mu\text{m}$. Seule la première antenne est constituée d'une nano particule unique. La distance d'interaction entre les particules varie du contact jusqu'à une distance de 100 nm par pas de 5 nm. Les directions x et y sont respectivement parallèle et perpendiculaire aux électrodes. Ce système de coordonnées sera conservé tout au long de cette partie. Les propriétés spectrales d'une antenne étant liées à la forme, nous avons choisi d'étudier deux orientations des dimères par rapport aux électrodes,

c'est-à-dire parallèle et perpendiculaire. Le substrat sélectionné est une lamelle de verre de 22 mm × 22 mm. Comme il s'agit d'un substrat isolant, il ne nous a pas été possible d'obtenir des images hautes résolution des antennes avec la microscopie électronique à balayage. Nous avons confirmé par une imagerie optique l'orientation des dimères, avant d'immerger l'échantillon dans les cristaux liquides.

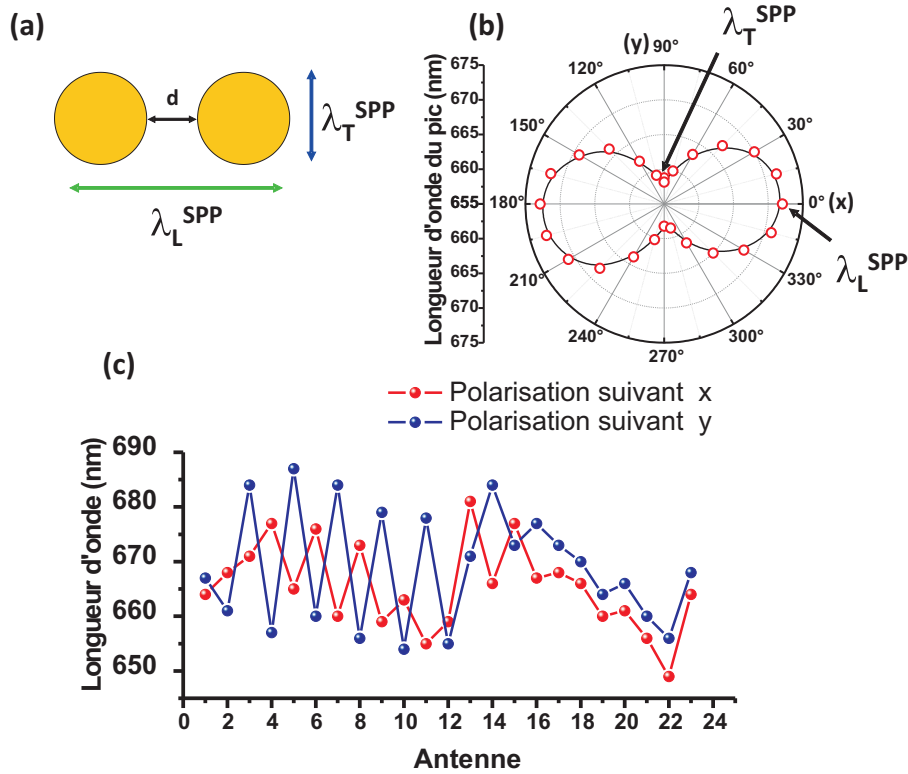


FIGURE 2.5 – (a) Représentation schématique d'une antenne dimère (nano particules couplées). Il est possible de définir une longueur d'onde de résonance λ_L^{SPP} (en vert) et λ_T^{SPP} (en bleu). La distance d représente la distance de couplage entre les deux particules. (b) Réponse spectrale d'un dimère (deux particules de 70 nm couplées) en fonction de la polarisation de la lumière incidente. (c) Représentation graphique de la longueur d'onde de résonance des antennes pour deux orientations de la polarisation.

Cette confirmation a été effectuée par le biais d'une spectroscopie en champ sombre à l'aide du microscope présenté précédemment. Sur la figure 2.5 (a) est dessinée la représentation schématique d'un dimère. Il a été montré que ce type d'antenne a une réponse spectrale différente en fonction de la polarisation de la lumière [11, 33, 51]. Nous définissons une longueur d'onde de résonance longitudinale (λ_L^{SPP}) suivant le grand axe du dimère, et une longueur d'onde de résonance transverse (λ_T^{SPP}) suivant le petit axe, avec $\lambda_T^{SPP} < \lambda_L^{SPP}$. Sur la figure 2.5 (b) est représentée l'évolution de la résonance d'une antenne dimère en fonction de la polarisation de la lumière incidente. La résonance passe de façon monotone de λ_T^{SPP} pour 90° à λ_L^{SPP} pour 0° . L'explication de ce comportement est liée à la largeur à mi-hauteur (σ) des pics de résonance qui est supérieure ($\sigma \approx 30$ nm) à la différence entre les deux longueurs d'ondes ($\Delta\lambda = \lambda_L^{SPP} - \lambda_T^{SPP} = 14$ nm). Cette condition impose qu'il n'y ait qu'un seul pic visible quelque soit la polarisation. De plus, les

particules considérées étant d'une taille d'environ 70 nm, seule la résonance dipolaire est visible. Ces antennes présentent donc un comportement connu d'un dimère dans un milieu d'indice homogène. Sur la figure 2.5 (c) est représentée la longueur d'onde de résonance pour toutes les antennes suivant deux polarisations spécifiques. L'antenne n°1 correspond à la particule unique. Sa réponse spectrale est la même quelque soit la polarisation (particule sphérique). Pour les dimères compris entre le n°2 et le n°15, la résonance plasmon longitudinale alterne en fonction de la polarisation incidente. Ceci montre bien que le grand axe du dimère n'est pas aligné de la même façon. A partir de l'antenne n°16, la distance inter-particule est trop grande pour que celles-ci soient en interaction. La réponse spectrale correspond à celle de deux particules isolées.

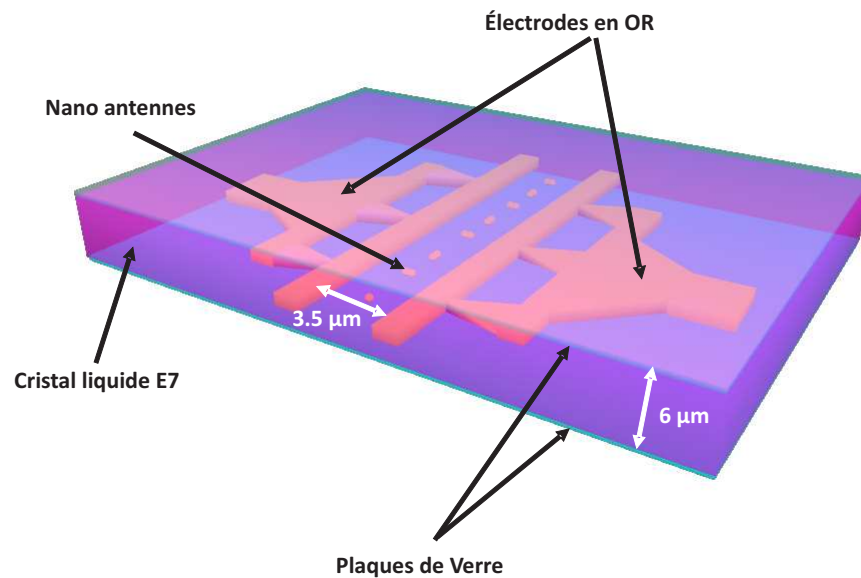


FIGURE 2.6 – Représentation schématique en 3 dimensions de la cellule. L'épaisseur de la cellule est d'environ 6 µm.

L'échantillon ainsi obtenu a ensuite été immergé dans une solution de cristal liquide E7[®]. Cette solution est composée d'un solvant volatile. Afin de conserver l'intégrité du produit il est nécessaire de sceller celui-ci hermétiquement. Le résultat final de la cellule est représenté de façon schématique sur l'image 2.6. La cellule est formée de deux plaques de verres de 22 mm × 22 mm maintenues par de la colle UV. Des sphères de 6 µm de diamètres ont été mélangées à la colle UV pour espacer les deux plaques et assurer une homogénéité de l'épaisseur. La colle UV est ensuite appliquée sur tout le pourtour de la cellule assurant ainsi le maintien de tous les éléments ainsi qu'une bonne étanchéité.

Chapitre 3

Contrôle électrique de la résonance plasmon d'une antenne optique

Sommaire

3.1	Influence de la cellule sur le trajet lumineux	19
3.2	Etude en polarisation du changement de la résonance plasmon d'une particule unique	23
3.3	Etude en polarisation du changement de la résonance plasmon de deux particules couplées (dimère)	25
3.4	Pour résumer	28

Dans les précédentes études effectuées sur le changement des propriétés d'une antenne optique avec des cristaux liquides, les molécules de ce dernier sont pré-alignées. Cette étape est généralement réalisée par l'intermédiaire d'une couche de matériaux organiques spécifiques imposant une orientation planaire des molécules [47]. L'indice optique est de ce fait orienté suivant n_e . Lorsqu'une tension est appliquée sur les électrodes disposées hors plan, l'indice optique passe d'une valeur n_e vers n_0 . Dans notre cas, les électrodes étant planaires, ce type de configuration rendrait inefficace la rotation des molécules. C'est pourquoi nous n'avons pas utilisé de couche de pré-alignement. Dans ce chapitre sont présentés les résultats obtenus sur le contrôle électrique de la longueur d'onde de résonance d'une antenne optique avec, pour la première fois, une géométrie d'électrodes planaires.

3.1 Influence de la cellule sur le trajet lumineux

Avant de commencer à étudier l'effet des cristaux sur la résonance des nano antennes, une vérification du bon fonctionnement de la cellule a été effectuée. Cette

étude préliminaire a été réalisée par le biais d'un microscope en transmission à contraste de polarisation. Grâce à un analyseur placé entre la sortie du microscope et une caméra CCD, il a été possible de déterminer l'état de polarisation de la lumière après la traversée de la cellule. Pour éviter toute dégradation des cristaux liquides il est nécessaire d'appliquer une tension alternative [49]. La fréquence du signal est choisie à 1 kHz. Le temps de réponse des molécules étant de l'ordre de quelques dizaines de millisecondes [52], celles-ci ne suivront pas la forme du signal. Les résultats obtenus pour un champ électrique appliqué à la cellule de $0 \text{ V}/\mu\text{m}$ et de $2.9 \text{ V}/\mu\text{m}$ (valeur maximum utilisée), lorsque l'analyseur est aligné ou croisé avec le polariseur sont présentés sur la figure 3.1.

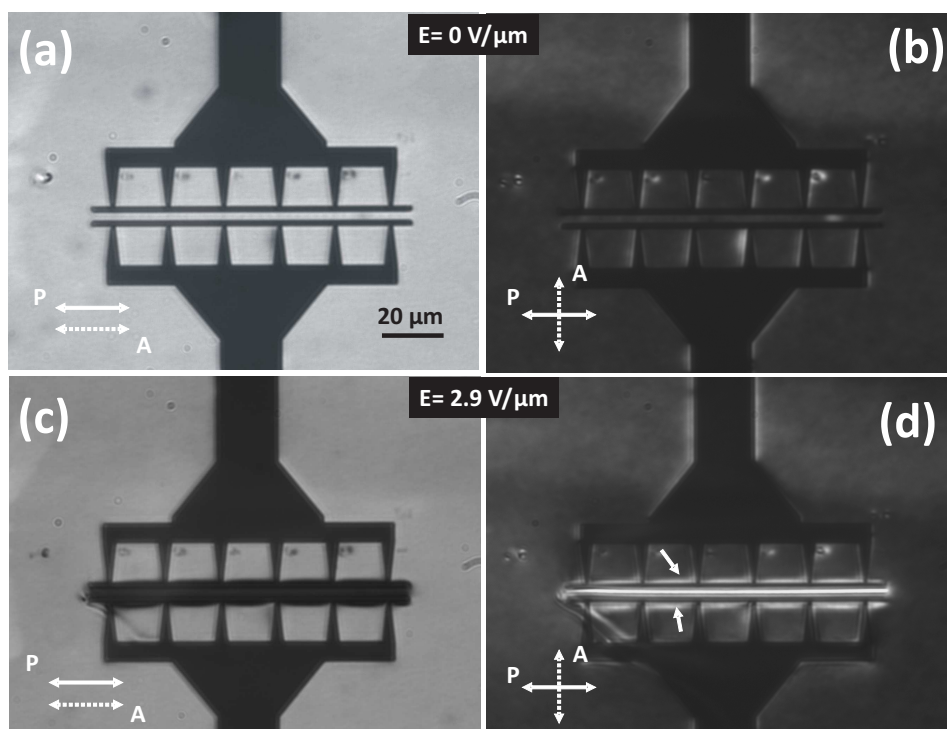


FIGURE 3.1 – Images optiques en transmission de la cellule obtenues pour deux champs électriques appliqués. Les résultats obtenus pour le couple polariseur/analyseur alignés (image (a) et (c)) et croisés (image (b) et (d)) sont présentés pour les deux champs.

Les électrodes en or apparaissent en noir sur les images en transmission. Pour les images (a) et (b) (à tension nulle appliquée) le contraste est homogène sur toute l'image. Ceci montre que même sans l'utilisation d'une couche de pré-alignement, les molécules ne forment pas de domaine et que celles-ci sont réparties de façon homogène sur la surface. Pour l'analyseur croisé avec le polariseur, il y a une extinction de la lumière qui traverse la cellule dans l'image 3.1 (a). La polarisation a été tournée par pas de 45° afin de vérifier l'extinction. Celle-ci a toujours eu lieu lorsque le polariseur et l'analyseur sont croisés. Ce résultat nous montre que la polarisation de la lumière n'est pas modifiée par les cristaux liquides pour un champ de $0 \text{ V}/\mu\text{m}$. Les molécules sont en conséquence disposées de façon homéotropique sur la surface, c'est-à-dire orientées perpendiculairement à la surface de l'échantillon (cf. figure 3.2)

[53].

Pour un champ appliqué de $2.9 \text{ V}/\mu\text{m}$, une inversion de contraste de la zone située entre les électrodes est observée. Ce changement montre l'effet de l'application du champ électrique sur les cristaux liquides. L'extinction est cette fois obtenue pour l'analyseur et le polariseur alignés. Cette rotation de 90° par rapport à $0 \text{ V}/\mu\text{m}$ montre que les molécules entre les électrodes sont alignées avec la direction du champ électrique appliqué (cf. figure 3.2). Au vu des résultats obtenus, la rotation des molécules est effective lorsqu'une tension est appliquée entre les deux électrodes. De plus, la répartition des molécules est homogène sur toute la surface de l'échantillon. Néanmoins, l'épaisseur des électrodes est de l'ordre de 100 nm et est donc nettement inférieure à l'épaisseur totale de la cellule ($h=6 \mu\text{m}$). Comme le montre le schéma sur la figure 3.2 (b), l'orientation des molécules n'est sûrement pas homogène sur toute l'épaisseur. D'après le théorème de Mauguin, la polarisation d'un faisceau incident est toujours alignée avec le directeur des cristaux, en conséquence de quoi cette réorientation des molécules va modifier la polarisation incidente aux abords des électrodes. C'est pourquoi nous avons étudié le changement de la polarisation incidente en fonction de la tension appliquée à la cellule.

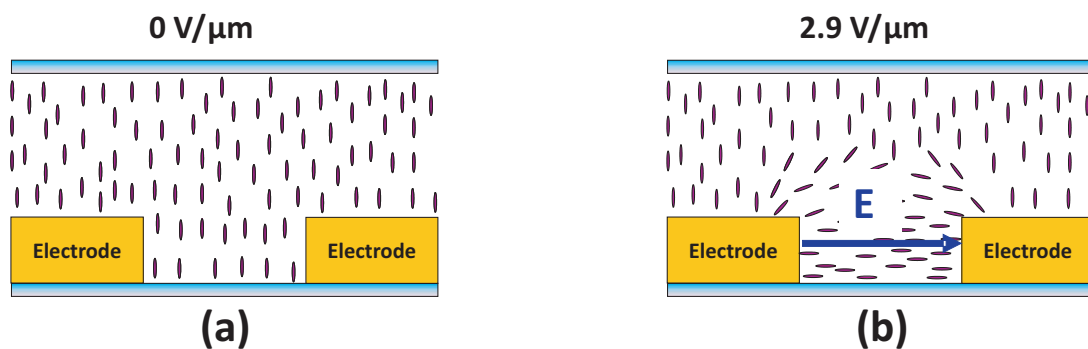


FIGURE 3.2 – Représentation schématique de l'alignement des molécules de cristaux liquide dans la cellule pour (a) $0 \text{ V}/\mu\text{m}$ et (b) $2.9 \text{ V}/\mu\text{m}$

Pour réaliser cette étude nous avons utilisé une source laser monochromatique à $\lambda=633 \text{ nm}$, focalisée entre les deux électrodes planaires. À l'aide d'un objectif à immersion d'huile avec une grande ouverture numérique, la lumière transmise est collectée, puis focalisée sur un photodétecteur. Un analyseur placé juste avant le détecteur permet d'obtenir le minimum et le maximum de lumière transmise en fonction de la polarisation incidente. Cette dernière est contrôlée par un couple polariseur/lame demi-onde afin de conserver une intensité constante du faisceau quelque soit la polarisation choisie. Le système utilisé est représenté schématiquement sur la figure 3.3 (a). Le diamètre du faisceau focalisé est d'environ 600 nm . La détection du minimum d'intensité ainsi que de son maximum en respectant un écart de 90° nous a permis de mesurer la modification de la polarisation incidente en fonction de la tension appliquée à la cellule. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 3.3 (b). La polarisation incidente suivant 90° est alignée avec la direction y et respectivement la polarisation 0° avec la direction x . En accord avec le théorème de Mauguin, la lumière transmise ne possède pas la même polarisation en fonction de la rotation des molécules. Néanmoins, comme le montre les régressions linéaires

réalisées sur les séries de points, il existe une relation entre la polarisation incidente et celle transmise. Comme nous souhaitons étudier le changement de la résonance plasmon des antennes en fonction de la polarisation, il nous est nécessaire de connaître la polarisation de la lumière incidente vue par la particule. Nous considérons que cette dernière est la même que celle déterminée après avoir traversée la cellule. En effet, le changement de polarisation peut être considéré comme le même sur toute la hauteur des électrodes. Comme la relation entre la polarisation incidente et celle transmise est linéaire, il est possible d'accéder à celle vue par l'antenne. Dans la suite, les résultats des études en polarisation tiennent compte de cette correction et la polarisation affichée est celle présente au voisinage de la particule.

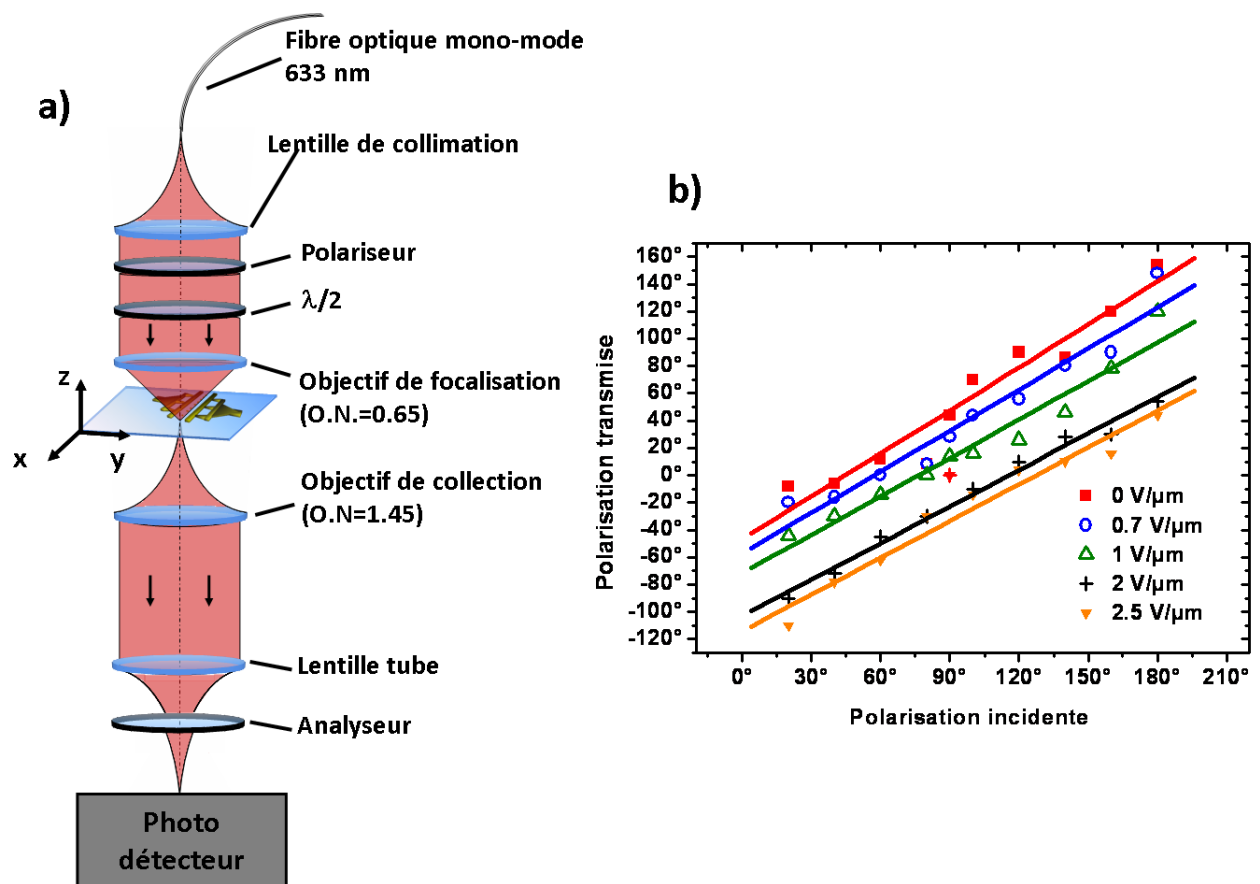


FIGURE 3.3 – (a) Représentation schématique du système utilisé. Une source laser à 633 nm est focalisée sur le plan de l'échantillon à l'aide d'un objectif. Le diamètre du spot est d'environ la longueur d'onde λ et est inférieur à la distance entre les deux électrodes. La polarisation est contrôlée grâce à un couple polariseur/lame demi-onde, assurant ainsi une intensité constante du faisceau quelque soit la polarisation. La collection se fait par un objectif à immersion d'huile avec une grande ouverture numérique (N.A.=1.45). La lumière collectée est focalisée sur un photodétecteur. Un analyseur est placé juste devant le détecteur afin d'analyser les composantes du signal lumineux. (b) Mesure de la polarisation transmise à travers la cellule en fonction de la polarisation incidente pour plusieurs valeurs du champ électrique appliquées entre les électrodes.

3.2 Etude en polarisation du changement de la résonance plasmon d'une particule unique

Les résultats précédents ont permis de montrer une rotation effective des cristaux liquides sous l'application d'un champ électrique. Nous avons étudié les changements de la résonance plasmon d'une particule unique immergée dans un milieu d'indice anisotrope. Dans le cas où une nano particule sphérique est placée dans un milieu linéaire, homogène, et isotrope, la longueur d'onde de résonance plasmon est insensible à la polarisation. La figure 3.4 (a) montre l'évolution de la résonance d'une particule sphérique immergée dans les cristaux liquides pour une tension appliquée nulle. Il résulte de ce graphique que la longueur d'onde de résonance de cette dernière est invariante par rapport à la polarisation. Ce résultat confirme que l'indice optique autour de la particule pour une cellule à $0 \text{ V}/\mu\text{m}$ est homogène. Différentes expériences effectuées sur des nano particules uniques dans un milieu anisotrope ont montré que la résonance plasmon devenait sensible à la polarisation [46, 54]. La différence entre ces résultats et celui que nous avons obtenu est simplement due à l'absence d'une couche de pré-alignement. Cette dernière a pour effet d'aligner le directeur des cristaux parallèlement au plan de l'interface. De cette manière l'indice optique est anisotrope, d'où la sensibilité de la résonance plasmon. Dans notre cas, les molécules ne sont pas orientées de cette façon. Le fait que la réponse spectrale de l'antenne soit homogène confirme que l'alignement des molécules est homéotrope [53].

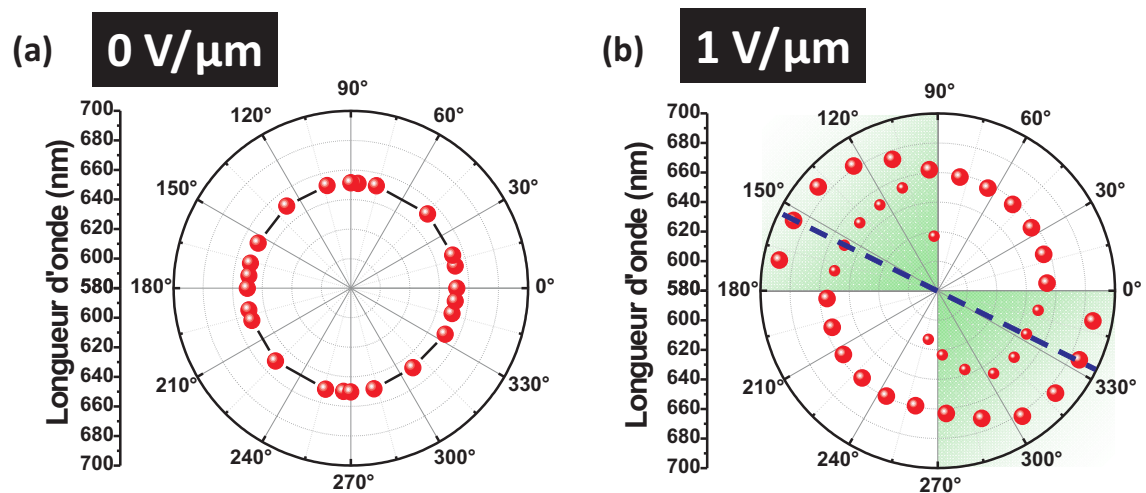


FIGURE 3.4 – Graphique polaire de la longueur d'onde de résonance plasmon d'une particule unique immergée dans les cristaux liquides pour (a) $0 \text{ V}/\mu\text{m}$ et (b) $1 \text{ V}/\mu\text{m}$ appliqué en fonction de la polarisation incidente. L'amplitude des pics de résonance est encodée dans la taille du point.

Sur le graphique 3.4 (b) est représentée l'évolution de λ^{SPP} en fonction de la polarisation pour un champ électrique appliqué de $1 \text{ V}/\mu\text{m}$. Deux zones de polarisation sont identifiables pour lesquelles la résonance plasmon de l'antenne est différente. La première zone correspond à la partie repérée en blanc. Dans celle-ci, la valeur de la longueur d'onde de résonance ($\lambda = 657 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$) a très peu changé par rapport

à la valeur pour un champ électrique nul ($\lambda = 650 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$). Ce comportement est différent pour la seconde zone (repérée en vert sur le graphique). L'antenne présente cette fois deux résonances plasmons. Cet effet n'est pas observable dans le cas d'une orientation hors plan du directeur des cristaux [46]. Le maximum de décalage vers le rouge est obtenu pour une polarisation suivant $165^\circ \leftrightarrow 345^\circ$. Cette direction n'est pas alignée avec la direction des lignes de champ et laisse penser qu'une partie seulement des molécules du cristal liquide a subi une rotation. Nous n'avons malheureusement pas eu la possibilité d'explorer des valeurs supérieures du champ électrique pour la particule unique. Il se trouve qu'avec la rotation des molécules du cristal liquide, la diffusion de lumière par les électrodes devient plus importante (cf. flèches blanches dans la figure 3.1 (d)). Cet effet a pour conséquence de diminuer le contraste sur le signal diffusé par l'antenne.

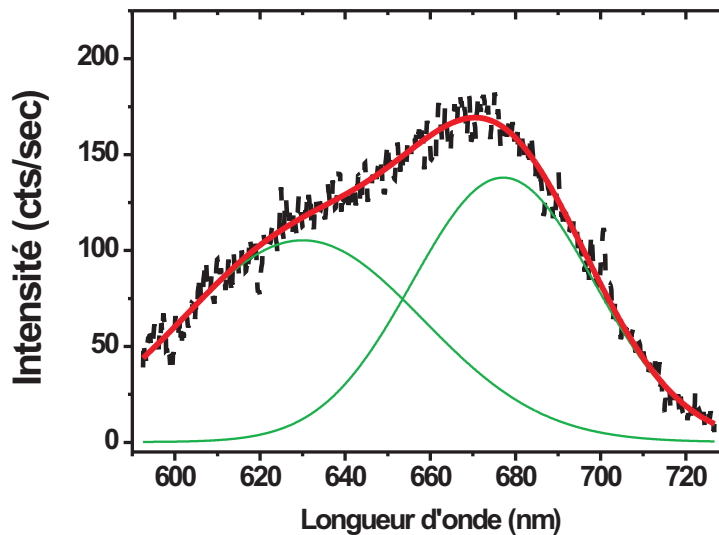


FIGURE 3.5 – Spectre d'une particule unique pour $V=1 \text{ V}/\mu\text{m}$ avec une polarisation de 150° . En rouge est représenté l'ajustement de la courbe en noir, formé par la somme des deux Gaussiennes en vert.

La réponse d'une antenne isotrope dans un milieu anisotrope est clairement différente d'une antenne anisotrope dans un milieu isotrope (cf. figure 2.5 (b)). Dans le second cas, l'antenne ne présente qu'un seul pic de résonance par angle de polarisation. Dans notre cas, l'amplitude des pics a été encodée dans la taille des points. Dans la zone où deux pics sont présents, L'intensité diffusée est toujours maximum pour le pic le plus décalé vers le rouge (cf. figure 3.5). D'après leurs positions et leurs amplitudes, ces seconds pics ressemblent à l'expression d'une résonance quadrupolaire de l'antenne [55]. Dans le cas de l'or, l'excitation de ces modes n'est visible normalement que pour des particules dont le diamètre est supérieur à 100 nm. Plusieurs hypothèses peuvent être émises pour expliquer ce comportement :

- La taille effective de la particule est augmentée par la présence de l'indice et le mode quadrupolaire est excité.

- L'organisation des molécules génère un indice rendant le mode quadrupolaire radiatif.

Ce décalage de la longueur d'onde de résonance n'est dû qu'à quelques couches de cristaux liquides. En effet, la distance d'interaction d'un plasmon localisé à cause de son haut degré de confinement, est dans l'air de l'ordre de 15 à 30 nm [33, 35, 51]. La taille d'une molécule étant de l'ordre de 2 à 3 nm [53], il est raisonnable d'estimer que le plasmon n'est sensible qu'à une dizaine de couche de molécules [56].

3.3 Etude en polarisation du changement de la résonance plasmon de deux particules couplées (dimère)

Après avoir observé les effets sur une antenne de référence (particule unique), nous avons étudié le cas d'une antenne composée de deux particules couplées (dimère). La situation est maintenant telle que l'objet est anisotrope dans un milieu anisotrope. Lorsqu'un dimère est placé dans un milieu isotrope, sa longueur d'onde de résonance évolue de façon monotone de λ_L^{SPP} à λ_T^{SPP} en fonction de la polarisation incidente (cf. figure 2.5 (b)).

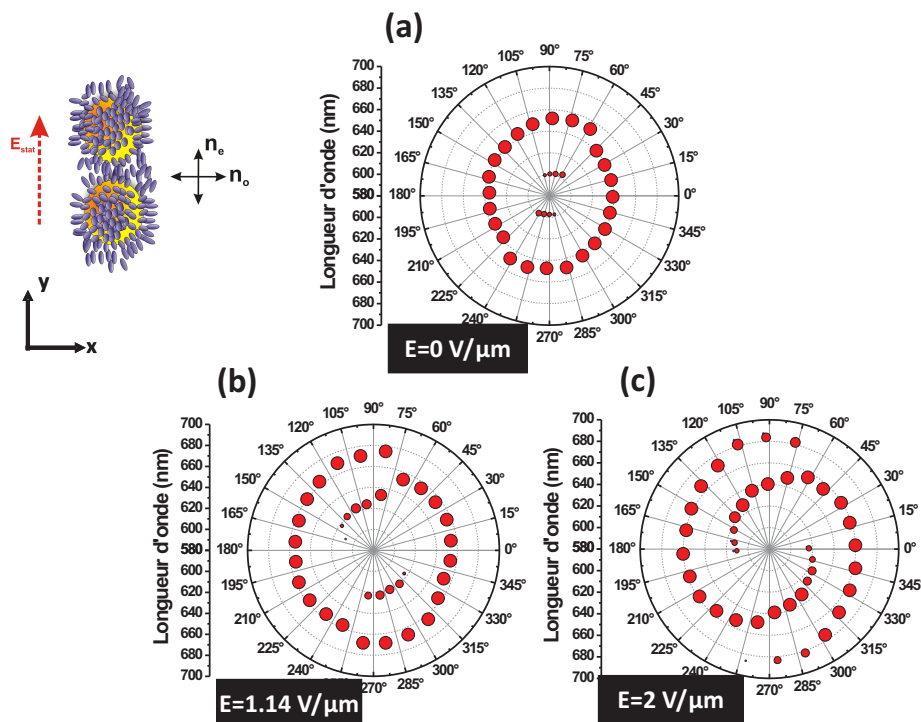


FIGURE 3.6 – Graphiques polaires de l'évolution de la longueur d'onde de résonance d'un dimère orienté perpendiculairement aux électrodes pour $0 \text{ V}/\mu\text{m}$ (a), $1.14 \text{ V}/\mu\text{m}$ (b) et $2 \text{ V}/\mu\text{m}$ (c). L'amplitude des pics est encodée dans la taille des points.

Sur la figure 3.6 sont représentées pour trois valeurs différentes du champ électrique appliqué à la cellule, l'évolution de la réponse spectrale en fonction de la

polarisation incidente pour un dimère orienté perpendiculairement aux électrodes. Dans le cas où il n'y a pas de champ appliqué (cf. figure 3.6 (a)), la longueur d'onde la plus décalée vers le rouge est alignée avec la polarisation suivant $90^\circ \leftrightarrow 270^\circ$. Autrement dit, le grand axe du dimère se trouve aligné suivant la direction y et est perpendiculaire aux électrodes. Lorsqu'un dimère est placé dans un milieu d'indice homogène, le décalage entre la longueur d'onde transverse (λ_T^{SPP}) et longitudinale (λ_L^{SPP}) est bien marqué (cf. figure 2.5 (b)). Ce n'est plus aussi visible lorsque l'antenne se retrouve immergée dans les cristaux liquides. De plus, il y a une zone de polarisation où un second pic de résonance est visible dans les spectres. L'amplitude des pics est encodée dans la taille des points. Comme précédemment le pic le plus important est toujours celui qui est le plus décalé vers le rouge. Ce comportement ressemble encore à l'expression d'une résonance quadrupolaire de l'antenne [32]. Pour un champ de $1.14 \text{ V}/\mu\text{m}$ (cf. figure 3.6 (b)), les premiers changements significatifs sur la résonance de l'antenne apparaissent. Cette tension correspond à la transition de Fréedericksz [50]. Le fait que les molécules du cristal liquide aient commencé leur rotation entraîne la détection de nombreuses secondes résonances dans la réponse spectrale de l'antenne. La plage de polarisation pour laquelle il était possible d'exciter un mode dipolaire et quadrupolaire est maintenant étendue à toutes les polarisations possibles. Lorsque le champ appliqué est de $2 \text{ V}/\mu\text{m}$ (cf. figure 3.6 (c)), quelque soit la polarisation choisie, il existe deux résonances. A cette valeur, toutes les molécules ou presque ont effectué une rotation pour être alignées avec la direction du champ électrique appliqué. Les molécules sont donc alignées suivant la direction y , et donc l'indice optique du milieu est donné suivant cet axe par l'indice extraordinaire de l'ellipsoïde des indices. Les molécules présentes dans le gap de l'antenne ont aussi subis la rotation et sont donc elles aussi alignées avec la direction y . L'indice effectif présent dans le gap de l'antenne est donc d'une valeur proche de n_e . La longueur d'onde de résonance de l'antenne présente un maximum lorsque la polarisation est suivant la direction y (c'est-à-dire suivant $90^\circ \leftrightarrow 270^\circ$). Dans le cas d'une interaction entre particules, un décalage de la longueur d'onde de résonance longitudinale vers le rouge se traduit par une diminution de la distance d'interaction [33]. De part la forte valeur de l'indice présente dans la zone de couplage, leur interaction est donc augmentée [57].

Nous venons de voir l'influence des cristaux pour le cas d'un dimère perpendiculaire aux électrodes. Les résultats pour un dimère cette fois orienté parallèlement aux électrodes sont présentés sur la figure 3.7. D'après l'évolution de la longueur d'onde de résonance de l'antenne en fonction de la polarisation pour une tension nulle, celle qui est la plus décalée vers le rouge se trouve suivant la polarisation $0^\circ \leftrightarrow 180^\circ$. Ce résultat confirme que l'axe du dimère est bien aligné parallèlement aux électrodes. Comme attendu entre un dimère parallèle et un dimère perpendiculaire aux électrodes, leurs réponses spectrales sont différentes de 90° . Encore une fois, le fait d'avoir immergé l'antenne dans les cristaux liquides a diminué la différence entre (λ_T^{SPP}) et (λ_L^{SPP}). Tout comme le dimère perpendiculaire, un second pic de résonance est visible dans une gamme de polarisation proche du grand axe. Lorsque la tension correspondant à la transition de Fréedericksz est atteinte, l'évolution de la longueur d'onde de résonance est complètement différente de celle du dimère précédent. Les résonances présentant deux pics ont évolué en se décalant vers le rouge tout en

conservant à peu près le même écart ($\Delta\lambda \approx 60$ nm). La zone possédant deux pics de résonance n'est plus centrée suivant la polarisation $0^\circ \leftrightarrow 180^\circ$. Elle est maintenant alignée avec la polarisation $15^\circ \leftrightarrow 345^\circ$. Ceci montre que les molécules ont commencé leur rotation. Lorsque la valeur de $2 \text{ V}/\mu\text{m}$ est atteinte pour ce dimère (cf. figure 3.7 (c)), l'évolution n'est toujours pas la même que pour le dimère perpendiculaire. Seule la valeur de polarisation pour laquelle la longueur d'onde de résonance est maximum a changée. Elle est maintenant orientée suivant la direction $60^\circ \leftrightarrow 240^\circ$. Cet effet laisse penser que la rotation des molécules n'est pas encore totale mais qu'une grande partie sont alignées avec le champ appliqué. Les travaux de Chu et al. [47] ont montré qu'une rotation de toutes les molécules d'un cristal liquide était atteinte pour un champ appliqué de $6 \text{ V}/\mu\text{m}$. Cette valeur est nettement supérieure à celle que nous avons utilisée lors de cette étude. Malgré le changement d'orientation du dimère, l'alignement final des molécules du cristal liquide est toujours le même, y compris pour celles présentes dans le gap de l'antenne. Cependant, cette fois le fort indice n'est pas aligné avec l'axe du dimère, il s'agit de l'indice le plus faible (n_0). Ce changement implique donc que l'interaction entre les particules va être diminuée [57].

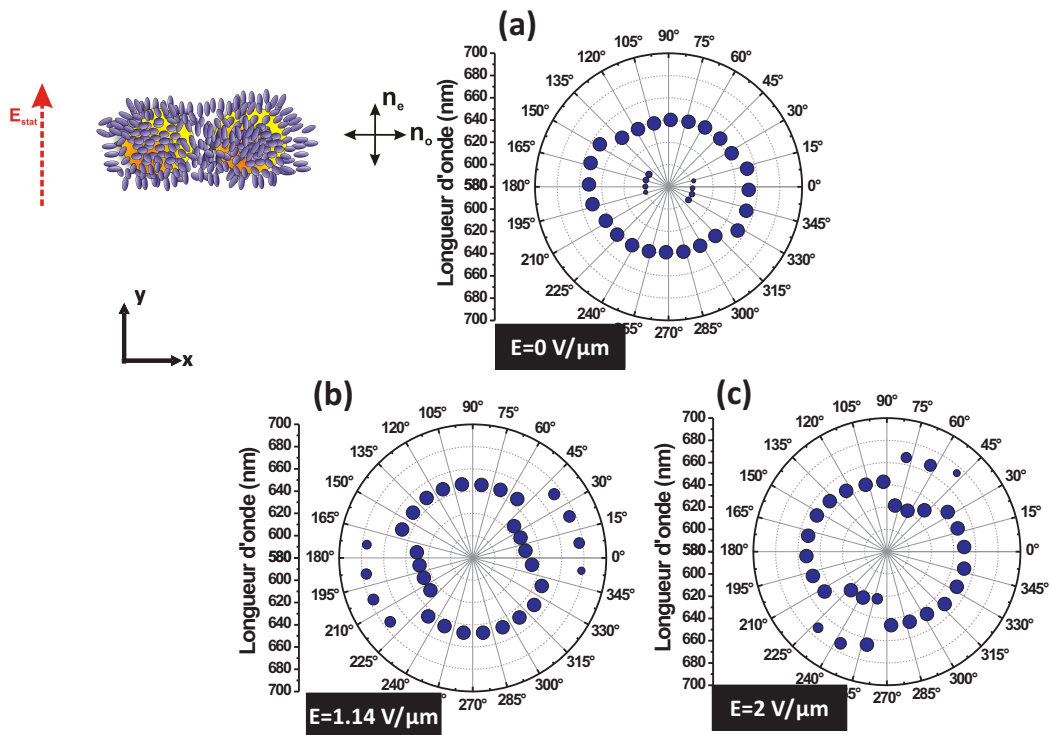


FIGURE 3.7 – Graphiques polaires de l'évolution de la longueur d'onde de résonance d'un dimère orienté parallèlement aux électrodes pour $0 \text{ V}/\mu\text{m}$ (a), $1.14 \text{ V}/\mu\text{m}$ (b) et $2 \text{ V}/\mu\text{m}$ (c). L'amplitude des pics est encodée dans la taille des points.

Au final, les changements sur la longueur d'onde de résonance sont strictement dépendants de la position initiale de l'antenne par rapport aux lignes de champs. Seul celui dont le grand axe est aligné avec les lignes de champ présente une forte sensibilité.

3.4 Pour résumer

Nous avons pu constater avec les résultats précédents que l'échantillon est fonctionnel et permet de modifier les propriétés spectrales d'une nano antenne optique. Généralement, un système optique utilise une polarisation fixée. Nous avons donc extrait des résultats précédents l'évolution de la résonance plasmon des antennes en fonction de la valeur du champ électrique pour une polarisation alignée suivant la direction x ($0^\circ \leftrightarrow 180^\circ$) et suivant la direction y ($90^\circ \leftrightarrow 270^\circ$). Les résultats sont regroupés sur les graphiques dans la figure 3.8. Ces deux axes de polarisations permettent directement de donner l'évolution de λ_L^{SPP} et λ_T^{SPP} pour les deux orientations des dimères. En noir est représentée la polarisation suivant la direction x et en rouge celle suivant la direction y .

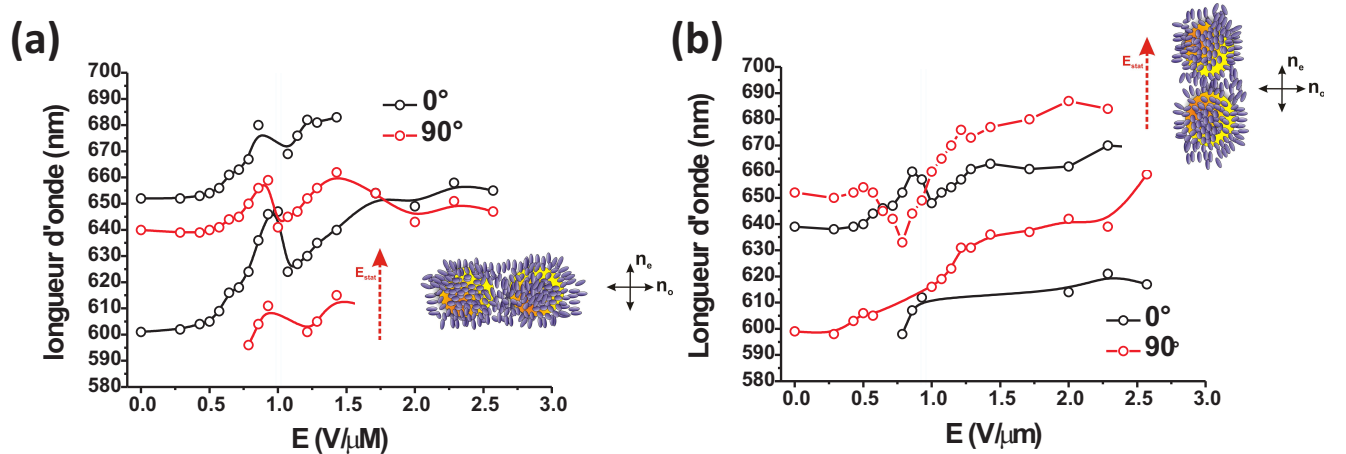


FIGURE 3.8 – Représentation de la longueur d'onde de résonance pour les polarisations 0° (noir) et 90° (rouge) en fonction de la tension appliquée à la cellule, pour un dimère parallèle (a) et perpendiculaire (b) aux électrodes.

Dans le cas du dimère parallèle aux électrodes, les deux pics de résonance sont présents pour une polarisation suivant $0^\circ \leftrightarrow 180^\circ$. Pour celui-ci, l'évolution de λ_L^{SPP} est donc définie par la couleur noire alors que l'évolution de λ_T^{SPP} est représentée par la courbe en rouge. La résonance transverse de l'antenne ne varie quasiment pas pour toute la plage d'amplitude du champ électrique appliqué ($\lambda_T = 645 \pm 8$ nm). Cette valeur de résonance est proche de celle d'une particule unique (cf. figure 3.4 suivant la direction $90^\circ \leftrightarrow 270^\circ$). L'évolution de la longueur d'onde longitudinale est en revanche différente. A $E=0$ V/ μ m deux pics de résonance sont excités, puis à fort champ un seul subsiste. De plus, la valeur de celle-ci se rapproche de la résonance transverse ($\lambda_T = 650$ nm). Cette évolution traduit donc une diminution de l'interaction entre les particules.

Sur la figure 3.8 (b) est présentée l'évolution de la longueur d'onde de résonance pour un dimère orienté perpendiculairement aux électrodes. Cette fois la résonance longitudinale de l'antenne est représentée par la courbe rouge, alors que la résonance transverse, est elle représentée par la courbe en noir. L'évolution de λ_T^{SPP} et λ_L^{SPP} sont complètement différentes de celles du dimère précédent. Quelque soit la valeur du champ électrique appliqué à la cellule supérieure à $0.75 \text{ V}/\mu\text{m}$, il y a toujours deux résonances longitudinales et transverses visibles. Concernant l'évolution de λ_L^{SPP} , sa valeur finale ($\lambda=684 \text{ nm}$) est plus importante que sa valeur initiale ($\lambda=652 \text{ nm}$). Ce comportement est cohérent avec le fait que l'indice optique dans le gap ait évolué vers une plus forte valeur et que donc l'interaction entre les particules ait elle aussi augmentée. Nous avons cependant noté que pour cette orientation, l'espacement entre la longueur d'onde dite dipolaire et celle dite quadrupolaire est tel que $\Delta\lambda=48 \text{ nm} \pm 3 \text{ nm}$. Ce type de comportement n'a pour le moment encore jamais été observé.

Globalement, ces deux graphiques reflètent parfaitement la conclusion à laquelle nous sommes arrivés précédemment, c'est-à-dire que le contrôle de la position des résonances est plus sensible pour un dimère orienté avec le champ électrique appliqué. Dans le chapitre suivant, nous allons démontrer que le contrôle électrique de la position des résonances permet de commander l'amplitude du signal diffusé par une nano antenne.

Chapitre 4

Réalisation d'un tuner optique

Sommaire

4.1	Système de caractérisation	31
4.2	Le tuner optique	32

Le contrôle de la longueur d'onde de résonance d'une antenne optique est possible en utilisant une géométrie planaire d'électrode et des cristaux liquides. Nous avons donc un système permettant de changer les propriétés spectrales d'une antenne par une commande électrique externe. De plus, nous avons montré qu'en fixant la polarisation, il est alors possible de changer significativement la longueur d'onde de résonance.

Étant donné que nous sommes capable de contrôler les propriétés spectrales, ces changements doivent s'opérer sur l'intensité de diffusion d'une antenne optique excitée à une longueur d'onde de travail. Nous avons donc étudié le comportement de ces antennes dans le cas d'une excitation mono longueur d'onde et d'une polarisation fixe. Dans ce chapitre nous présentons le système de caractérisation développé pour cette étude ainsi que les résultats obtenus.

4.1 Système de caractérisation

Comme nous l'avons mentionné précédemment dans cette partie, la caractérisation d'antennes optiques est difficile de par leurs faibles sections efficaces de diffusion. Nous avons pour cela développé un microscope confocal permettant d'obtenir une image de l'intensité diffusée par des particules.

Les dimensions d'une nano antenne étant plus petite que la longueur d'onde d'excitation, celles-ci sont considérées comme des dipôles [33]. Lorsqu'un dipôle est dans un espace isotrope et homogène, son émission est effectuée suivant deux lobes symétriques (cf. figure 4.1 (a-1)). A partir du moment où la symétrie est brisée, avec par exemple l'insertion d'une surface de verre, l'émission du dipôle est modifiée

(cf. figure 4.1 (a-2)). Il y a dans ce cas l'apparition de deux lobes au delà des angles critiques θ_c . En utilisant un objectif à immersion avec une grande ouverture numérique, il est possible de collecter cette lumière diffusée.

La représentation schématique de ce système de caractérisation est présentée sur la figure 4.1 (b). Nous utilisons un système d'éclairage diascopique. L'excitation est effectuée par une source laser à 633 nm. Cette source est focalisée sur le plan de l'échantillon à l'aide d'un objectif avec une ouverture numérique de $O.N.=0.65$. Un filtrage spatial de l'excitation est réalisé grâce à un masque inséré dans le plan de Fourier du microscope. Celui-ci a pour but de supprimer les rayons du faisceau d'excitation contenu dans les angles sous-critiques et donc de ne détecter que la lumière diffusée par l'antenne aux angles surcritiques. La lumière diffusée est collectée grâce à un objectif à immersion d'huile avec une grande ouverture numérique $O.N.=1.45$. Celle-ci est ensuite focalisée sur le capteur d'un photomultiplicateur (PMT).

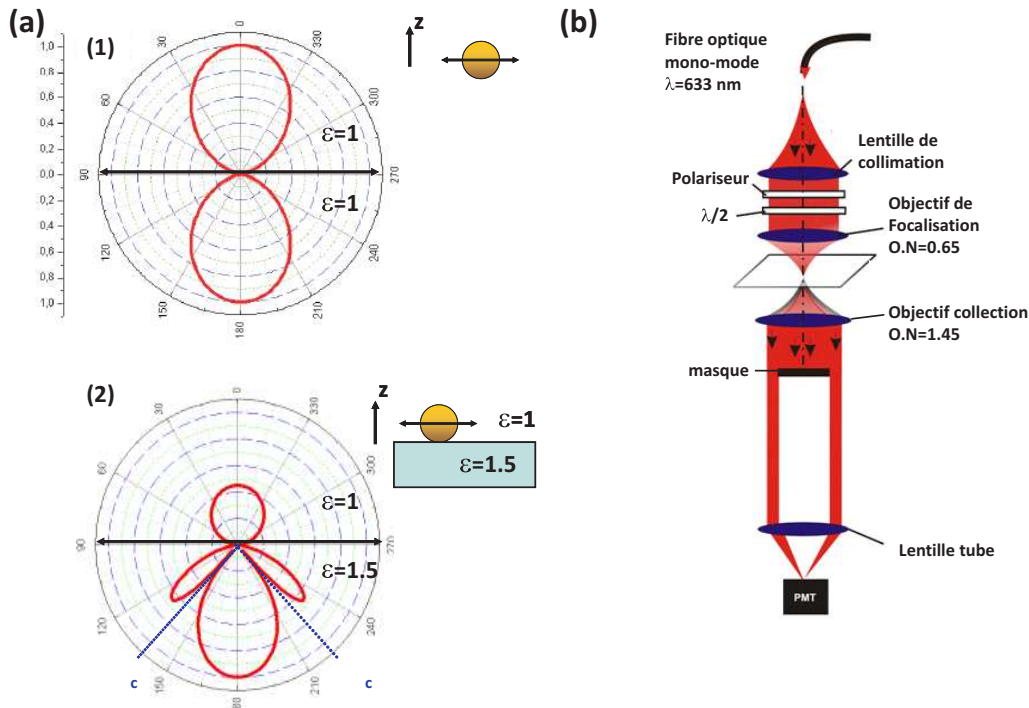


FIGURE 4.1 – (a) Calcul de la distribution d'intensité angulaire dans le plan (x, z) pour un dipôle placé dans l'air (1) et un dipôle placé à l'interface air/verre (2). le dipôle oscille suivant la direction x . (b) Représentation schématique du système de caractérisation utilisé.

4.2 Le tuner optique

En utilisant ce système de caractérisation, il est donc possible de regarder l'influence des cristaux liquides sur l'intensité diffusée par une antenne. Comme le montre la figure 4.2 (a), l'intensité diffusée par les antennes est fonction de l'orientation du grand axe par rapport aux électrodes ainsi que de l'amplitude du champ électrique appliqué sur la cellule. La polarisation est choisie alignée avec la direction

y ($90^\circ \leftrightarrow 270^\circ$). Le premier pic de signal correspond à l'intensité diffusée par la particule unique. L'antenne suivante est orientée perpendiculairement aux électrodes. Lorsque la cellule est à $0 \text{ V}/\mu\text{m}$, les dimères orientés perpendiculairement présentent une intensité trois fois moins importante que ceux orientés parallèlement. Pour un champ non nul appliqué à la cellule, l'intensité des dimères perpendiculaires varie, alors que celle des dimères parallèles est toujours maximum.

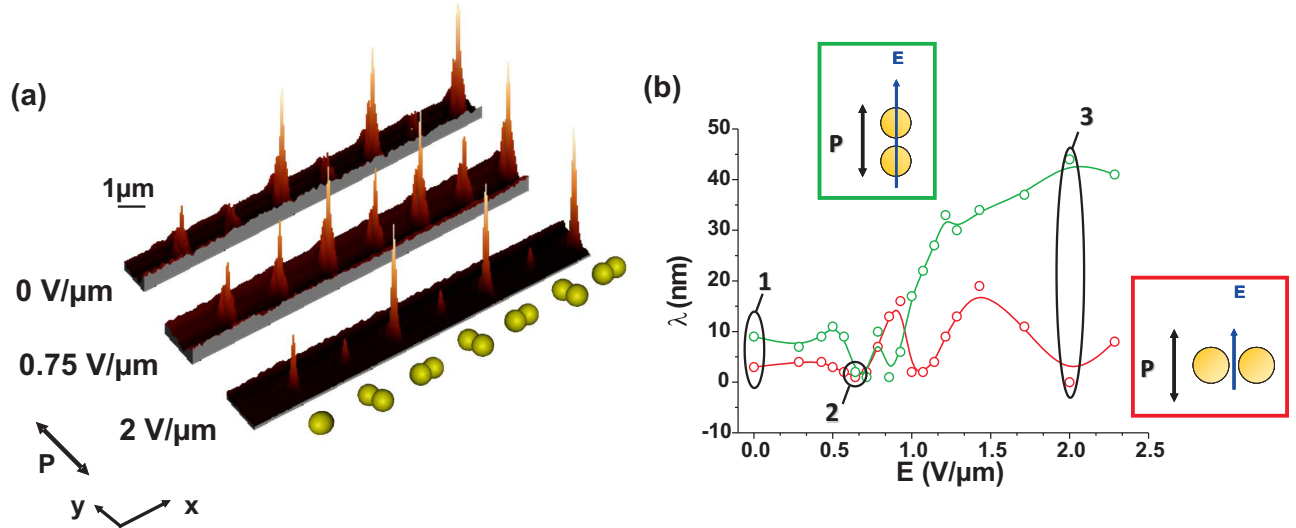


FIGURE 4.2 – (a) Images confocales de la lumière diffusée par les antennes pour $0 \text{ V}/\mu\text{m}$, $0.71 \text{ V}/\mu\text{m}$ et $2 \text{ V}/\mu\text{m}$ appliqué. La polarisation est choisie suivant la direction y (90°). (b) Représentation de $\delta\lambda$ pour un dimère orienté perpendiculairement en vert et parallèlement en rouge en fonction de l'amplitude du champ électrique appliqué sur la cellule.

Pour expliquer ce comportement, il est nécessaire de regarder la position de la longueur d'onde de résonance pour chaque orientation. Comme la polarisation est choisie suivant la direction y , dans le cas d'un dimère orienté parallèlement aux électrodes, il s'agit de sa longueur d'onde de résonance transverse qui est excitée, alors que dans le cas d'un dimère orienté perpendiculairement, c'est sa résonance longitudinale. L'excitation étant fixée à une seule longueur d'onde, il est possible de définir un facteur de désaccord $\delta\lambda$ tel que :

$$\delta\lambda = |\lambda_{exc} - \lambda_{SPP}| \quad (4.1)$$

Ce facteur permet de déterminer si l'antenne est excitée ou non à sa résonance. Dans le cas où $\delta\lambda$ est proche de 0, cela signifie que l'antenne est excitée à sa résonance et que donc la lumière diffusée est maximale. A l'inverse, lorsque ce paramètre devient important cela implique que l'antenne n'est plus résonante avec l'excitation et que donc la lumière diffusée est minimale [33]. Nous avons représenté sur la graphique de la figure 4.2 (b), l'évolution de $\delta\lambda$ pour un dimère parallèle (en rouge) et perpendiculaire (en vert) en fonction de la valeur du champ appliqué. En noir sur le graphique sont entourées les valeurs du facteur de désaccord correspondant aux trois caractérisations confocales de l'image 4.2 (a). Pour un champ nul appliqué, la courbe verte est au dessus de la courbe rouge, ceci signifie donc que le facteur de désaccord

des antennes perpendiculaires ($\delta\lambda=9$ nm) est supérieur à celui des antennes parallèles ($\delta\lambda=3$ nm). Pour un champ électrique de 0.71 V/ μm , les deux antennes ont la même valeur de $\delta\lambda=1$ nm. L'excitation est donc très proche de la résonance des antennes, d'où le maximum d'intensité diffusée dans l'image confocale. Finalement à 2 V/ μm , les antennes perpendiculaires présentent un fort facteur de désaccord ($\delta\lambda=44$ nm), alors que celui des antennes parallèles est proche de $\delta\lambda=0$ nm. L'intensité diffusée par un dimère perpendiculaire est minimum par rapport à un dimère parallèle.

Ces résultats montrent qu'il est donc possible d'accorder une antenne simplement en appliquant une tension électrique. Il serait envisageable d'utiliser ce phénomène pour créer un tuner optique piloté électriquement. Le point limitant du composant reste le temps de réponse des molécules du cristal liquide. Dans notre cas celui-ci est typiquement dans la gamme des millisecondes. Des résultats ont cependant montré qu'en ajustant le type de cristal utilisé ainsi que le solvant il était alors possible d'obtenir un temps de réponse des molécules de l'ordre de 100 μs [58]. Il serait donc possible en adaptant le solvant des cristaux liquides de réaliser un tuner optique rapide avec une commande électrique externe.

Chapitre 5

Conclusion

Dans cette partie nous avons utilisé un matériau équivalent à une capacité variable dans le but de contrôler les propriétés de nano antennes. Nous avons montré, par le biais d'une réalisation expérimentale, la viabilité d'un tel procédé. L'originalité de notre étude porte sur l'axe de rotation. C'est l'un des premiers systèmes utilisant des électrodes planaires pour contrôler la rotation des molécules. Cette configuration permet de changer de manière contrôlée les propriétés spectrales et de diffusion d'une antenne optique unique.

Lors de cette étude, nous nous sommes aussi aperçus de l'apparition d'une seconde résonance. Celle-ci possède des caractéristiques semblables à l'excitation d'un mode quadrupolaire (amplitude, position spectrale). L'explication de l'excitation d'un tel mode reste encore à l'heure actuelle à déterminer. Différentes hypothèses sont envisagées comme par exemple le fait que l'augmentation de l'indice optique puisse rendre radiatif un tel mode, ou encore un effet de mixage de polarisation.

Finalement grâce à ce changement des propriétés spectrales, il est possible de changer l'état de fonctionnement d'une nano antenne. En changeant la tension électrique appliquée aux électrodes, il est possible de faire passer une antenne d'un état "off" à état "on". Cette fonctionnalité pourrait à l'avenir servir pour le développement d'un tuner électro-optique.

Perspectives

Toutes nos études ont été réalisées de façon statique. Il serait intéressant de caractériser ce type de composant de façon dynamique. Notamment sur la dernière partie concernant le passage aux états on/off de l'antenne. L'utilisation d'un signal arbitraire avec des amplitudes bien choisies pourrait servir à réaliser un encodage optique de l'information.

Une autre application différente du tuner optique serait d'incorporer cette forme de contrôle sur une antenne de type Yagi-Uda, et plus particulièrement sur l'élément source de celle-ci. Cela permettrait d'avoir à la fois un contrôle en longueur d'onde et de bénéficier d'une directivité accrue.

Bibliographie

- [1] T. Milligan, “Modern antenna design,” (1985).
- [2] D. Pohl, “Near-field Optics : Principles and Applications,” Proceedings of the Second Asia-Pacific Workshop p. 273 (2000).
- [3] E. Synge, “A suggested method for extending microscopic resolution into the ultra-microscopic region,” Philosophical Magazine Series 7 **6**, 356–362 (1928).
- [4] J. Wessel, “Surface-enhanced optical microscopy,” Journal of the Optical Society of America B **2**, 1538–1541 (1985).
- [5] U. Fischer and D. Pohl, “Observation of single-particle plasmons by near-field optical microscopy,” Physical Review Letters **62**, 458–461 (1989).
- [6] J. Farahani, D. Pohl, H.-J. Eisler, and B. Hecht, “Single quantum dot coupled to a scanning optical antenna : a tunable superemitter,” Physical Review Letters **95**, 17402 (2005).
- [7] S. Kühn, U. Håkanson, L. Rogobete, and V. Sandoghdar, “Enhancement of single-molecule fluorescence using a gold nanoparticle as an optical nanoantenna,” Physical Review Letters **97**, 17402 (2006).
- [8] T. Taminiau, F. Segerink, and N. van Hulst, “A monopole antenna at optical frequencies : single-molecule near-field measurements,” IEEE Transactions on Antennas and Propagation **55**, 3010–3017 (2007).
- [9] P. Bharadwaj, B. Deutsch, and L. Novotny, “Optical antennas,” Advances in Optics and Photonics **1**, 438 (2009).
- [10] D. P. Fromm, A. Sundaramurthy, P. J. Schuck, G. Kino, and W. E. Moerner, “Gap-Dependent Optical Coupling of Single Bow-Tie Nanoantennas Resonant in the Visible,” Nano Letters **4**, 957–961 (2004).
- [11] C. Du, Y. You, X. Zhang, K. Johnson, and Z. Shen, “Polarization-Dependent Confocal Imaging of Individual Ag Nanorods and Nanoparticles,” Plasmonics **4**, 217–222 (2009).
- [12] E. Hao and G. Schatz, “Electromagnetic fields around silver nanoparticles and dimers,” The Journal of chemical physics **120**, 357 (2004).
- [13] T. Taminiau, F. Stefani, and N. van Hulst, “Enhanced directional excitation and emission of single emitters by a nano-optical Yagi-Uda antenna,” Optics Express **16**, 10858–6 (2008).
- [14] G. Lerosey, “Nano-Optics : Yagi-Uda antenna shines bright,” Nature Photonics **4**, 10–11 (2010).

-
- [15] A. Curto, G. Volpe, T. Taminiau, M. Kreuzer, R. Quidant, and N. van Hulst, “Unidirectional emission of a quantum dot coupled to a nanoantenna,” *Science* **329**, 930 (2010).
- [16] C. Girard and E. Dujardin, “Near-field optical properties of top-down and bottom-up nanostructures,” *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics* **8**, S73–S86 (2006).
- [17] M. Choi, K. Stanton-Maxey, J. Stanley, C. Levin, R. Bardhan, D. Akin, S. Badve, J. Sturgis, J. Robinson, R. Bashir, and Others, “A cellular Trojan horse for delivery of therapeutic nanoparticles into tumors,” *Nano Letters* **7**, 3759–3765 (2007).
- [18] A. Gobin, M. Lee, N. Halas, W. James, R. Drezek, and J. West, “Near-infrared resonant nanoshells for combined optical imaging and photothermal cancer therapy,” *Nano Letters* **7**, 1929–1934 (2007).
- [19] J. Zhao, X. Zhang, C. Yonzon, and A. Haes, “Localized surface plasmon resonance biosensors,” *Nanomedicine (London, England)* **1**, 219–28 (2006).
- [20] J. Homola, S. Yee, and G. Gauglitz, “Surface plasmon resonance sensors : review,” *Sensors and Actuators B : Chemical* **54**, 3–15 (1999).
- [21] H. Sota and Y. Hasegawa, “Detection of conformational changes in an immobilized protein using surface plasmon resonance,” *Analytical chemistry* **70**, 2019–24 (1998).
- [22] E. Cubukcu, E. Kort, K. Crozier, and F. Capasso, “Plasmonic laser antenna,” *Applied Physics Letters* **89**, 093120 (2006).
- [23] K. Catchpole and A. Polman, “Plasmonic solar cells,” *Optics Express* **16**, 21793–800 (2010).
- [24] J. Alda, J. Rico-García, J. López-Alonso, and G. Boreman, “Optical antennas for nano-photonics applications,” *Nanotechnology* **16**, S230 (2005).
- [25] L. Tang, S. Kocabas, S. Latif, and A. Okyay, “Nanometre-scale germanium photodetector enhanced by a near-infrared dipole antenna,” *Nature Photonics* **2**, 226–229 (2008).
- [26] R. Ritchie, “Plasma Losses by Fast Electrons in Thin Films,” *Physical Review* **106**, 874–881 (1957).
- [27] E. Economou, “Surface plasmons in thin films,” *Physical Review* **182**, 539 (1969).
- [28] H. Raether, “Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings,” (1988).
- [29] P. Mulvaney, “Surface plasmon spectroscopy of nanosized metal particles,” *Langmuir* **12**, 788–800 (1996).
- [30] M. Miller, “Sensitivity of metal nanoparticle surface plasmon resonance to the dielectric environment,” *The Journal of Physical Chemistry B* **109**, 21556–21565 (2005).
- [31] S. Underwood, “Effect of the solution refractive index on the color of gold colloids,” *Langmuir* **10**, 3427–3430 (1994).

- [32] K. Kelly, E. Coronado, and L. Zhao, “The optical properties of metal nanoparticles : the influence of size, shape, and dielectric environment,” *The Journal of Physical* **107**, 668–677 (2003).
- [33] C. Huang, A. Bouhelier, G. Colas des Francs, A. Bruyant, A. Guenot, E. Finot, J. Weeber, and A. Dereux, “Gain, detuning, and radiation patterns of nanoparticle optical antennas,” *Physical Review B* **78**, 155407 (2008).
- [34] C. Bohren and D. Huffman, “Absorption and scattering of light by small particles,” (1983).
- [35] I. Romero, J. Aizpurua, and G. Bryant, “Plasmons in nearly touching metallic nanoparticles : singular response in the limit of touching dimers,” *Arxiv preprint arXiv : 14*, 9988–99 (2007).
- [36] P. Olk, J. Renger, and M. Wenzel, “Distance dependent spectral tuning of two coupled metal nanoparticles,” *Nano Letters* **8**, 1174–1178 (2008).
- [37] T. Härtling, Y. Alaverdyan, and A. Hille, “Optically controlled interparticle distance tuning and welding of single gold nanoparticle pairs by photochemical metal deposition,” *Optics Express* **16**, 12362–71 (2008).
- [38] J. Merlein, M. Kahl, A. Zuschlag, A. Sell, and A. Halm, “Nanomechanical control of an optical antenna,” *Nature Photonics* **2**, 230–233 (2008).
- [39] F. Huang, “Actively Tuned Plasmons on Elastomerically Driven Au Nanoparticle Dimers,” *Nano Letters* **10**, 1787–92 (2010).
- [40] S. Bidault, F. de Abajo, and A. Polman, “Plasmon-based nanolenses assembled on a well-defined DNA template,” *Journal of the American Chemical Society* **130**, 2750–2751 (2008).
- [41] A. Alù and N. Engheta, “Input impedance, nanocircuit loading, and radiation tuning of optical nanoantennas,” *Physical Review Letters* **101**, 43901 (2008).
- [42] A. Alù and N. Engheta, “Tuning the scattering response of optical nanoantennas with nanocircuit loads,” *Nature Photonics* **2**, 307–310 (2008).
- [43] Y. Leroux, J. Lacroix, and K. Chane-Ching, “Conducting polymer electrochemical switching as an easy means for designing active plasmonic devices,” *Journal of the American Chemical Society* **127**, 16022–3 (2005).
- [44] Y. Zheng, Y. Yang, L. Jensen, and L. Fang, “Active molecular plasmonics : controlling plasmon resonances with molecular switches,” *Nano Letters* **9**, 819–25 (2009).
- [45] P. R. Evans, G. A. Wurtz, W. R. Hendren, R. Atkinson, W. Dickson, A. V. Zayats, and R. J. Pollard, “Electrically switchable nonreciprocal transmission of plasmonic nanorods with liquid crystal,” *Applied Physics Letters* **91**, 043101 (2007).
- [46] J. Müller, C. Sönnichsen, H. von Poschinger, G. von Plessen, T. A. Klar, and J. Feldmann, “Electrically controlled light scattering with single metal nanoparticles,” *Applied Physics Letters* **81**, 171 (2002).
- [47] K. Chu, C. Chao, Y. Chen, Y. Wu, and C. Chen, “Electrically controlled surface plasmon resonance frequency of gold nanorods,” *Applied Physics Letters* **89**, 103107 (2006).

-
- [48] J. J. Mock, M. Barbic, D. R. Smith, D. a. Schultz, and S. Schultz, "Shape effects in plasmon resonance of individual colloidal silver nanoparticles," *The Journal of Chemical Physics* **116**, 6755 (2002).
- [49] P. Kossyrev, A. Yin, and S. Cloutier, "Electric field tuning of plasmonic response of nanodot array in liquid crystal matrix," *Nano Letters* **5**, 1978–1981 (2005).
- [50] V. Freedericksz and V. Zolina, "Forces causing the orientation of an anisotropic liquid," *Transactions of the Faraday Society* **29**, 919–930 (1933).
- [51] W. Rechberger, A. Hohenau, and A. Leitner, "Optical properties of two interacting gold nanoparticles," *Optics Communications* **220**, 137–141 (2003).
- [52] H. Ren and S. Wu, "Single glass substrate liquid crystal device using electric field-enforced phase separation and photoinduced polymerization," *Applied Physics Letters* **90**, 191105 (2007).
- [53] P. de Gennes and J. Prost, *The physics of liquid crystals*, vol. 268 (Clarendon press Oxford, 1993).
- [54] S. Park, "Surface-enhanced plasmon splitting in a liquid-crystal-coated gold nanoparticle," *Physical review letters* **94**, 217401 (2005).
- [55] G. Schider, J. Krenn, a. Hohenau, H. Ditlbacher, a. Leitner, F. Aussenegg, W. Schaich, I. Puscasu, B. Monacelli, and G. Boreman, "Plasmon dispersion relation of Au and Ag nanowires," *Physical Review B* **68**, 1–4 (2003).
- [56] G. M. Koenig, B. T. Gettelfinger, J. J. de Pablo, and N. L. Abbott, "Using localized surface plasmon resonances to probe the nanoscopic origins of adsorbate-driven ordering transitions of liquid crystals in contact with chemically functionalized gold nanodots." *Nano Letters* **8**, 2362–8 (2008).
- [57] P. Jain, "Noble metal nanoparticle pairs : Effect of medium for enhanced nanosensing," *Nano Letters* **8**, 4347–52 (2008).
- [58] S. Wu, "Nematic liquid crystal modulator with response time less than 100 μ s at room temperature," *Applied Physics Letters* **57**, 986 (1990).

Deuxième partie

Nano-sources à plasmon pilotées électriquement

Chapitre 6

Introduction

Comme nous l'avons montré dans la partie précédente, les antennes optiques sont essentielles pour contrôler finement l'interaction des photons avec des structures nanométriques. De plus, celles-ci, lorsqu'elles sont mises en contact avec un milieu actif contrôlable à distance, peuvent acquérir des fonctionnalités actives. Cependant, l'excitation des plasmons de surface requiert l'utilisation de systèmes massifs qui n'adhèrent pas avec une idée de miniaturisation et d'intégration sur un même composant. L'excitation optique des plasmons de surface nécessite l'emploi de laser ainsi que de composants optiques (prismes, objectifs, lentilles) qui sont difficilement intégrables dans un composant. C'est pourquoi le développement de sources plasmoniques intégrées contrôlées par une commande externe est activement recherché.

Récemment, des travaux ont montré l'excitation de SPP par des sources intégrées électriques comme des diodes électroluminescentes (ou laser)[1, 2, 3], jonction Métal-Isolant-Métal (MIM) [4], ou encore avec un microscope à effet tunnel [5, 6]. Dans le cas des diodes, il s'agit d'exciter électriquement un milieu actif (électroluminescent) placé entre deux électrodes métalliques. Les photons ainsi produits vont alors se coupler au mode plasmon d'un film métallique placé à proximité. Dans le cas d'un microscope à effet tunnel ou d'une jonction MIM, la lumière est directement créée par effet tunnel inélastique. Ces auteurs ont montré expérimentalement le couplage de cette lumière dans une structure métallique. Une nouvelle approche pourrait être fournie par l'utilisation de nano-antennes. Dans le domaine des radiofréquences, les antennes sont des transducteurs convertissant une onde électromagnétique en courant électrique et vice-versa. La transposition de cette propriété dans le domaine des antennes optiques est possible en connectant celles-ci à une architecture électronique. Cette approche a permis de créer récemment plusieurs composants électro-optiques à base de nano-antennes [7, 8, 9, 10, 11, 12].

Motivations

Dans le cadre de cette thèse, nous avons donc cherché à développer des sources plasmoniques contrôlables électriquement à base de nano-antennes optiques. A cette fin, deux configurations ont été envisagées. La première est basée sur l'utilisation de nanotubes de carbone. Ceux-ci, utilisés dans une configuration de transistor à effet de champ peuvent émettre de la lumière par recombinaison radiative des charges

en régime ambipolaire [9]. Cette radiation lumineuse se trouve proche des longueurs d'onde Télécom pour des nanotubes relativement épais ($\emptyset \approx 30$ nm). Un des aspects intéressant de ce type de composant est la possibilité en ajustant la tension de grille de déplacer la position de l'émission lumineuse le long du nanotube [13]. En ajoutant un guide plasmonique à proximité de cette source lumineuse, il serait possible d'exciter un plasmon de surface. De part ses caractéristiques, ce type de composant est un candidat idéal pour réaliser un multiplexeur plasmonique piloté électriquement (cf. figure 6.1). Le premier chapitre de cette partie concerne les résultats préliminaires réalisés dans cette optique.

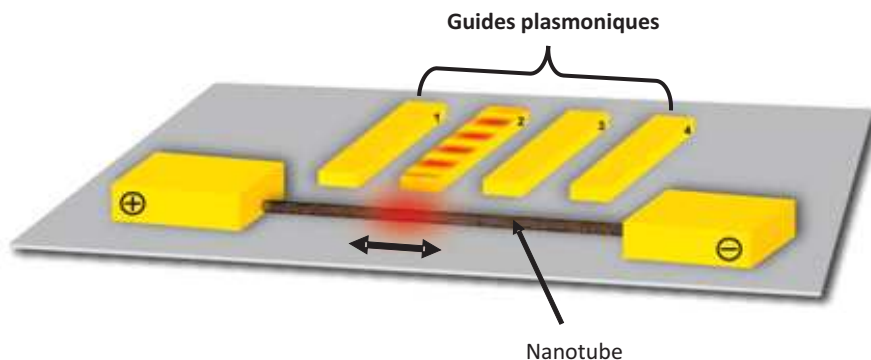


FIGURE 6.1 – Représentation schématique du composant final permettant l'excitation ainsi que le multiplexage d'un plasmon de surface.

La seconde configuration électroluminescente concerne l'utilisation de jonctions tunnels. Il a été montré que dans le cas de jonction métal-isolant-métal, il était possible de générer une source lumineuse. Cette même émission lumineuse existe dans un microscope à effet tunnel. Récemment cette émission lumineuse a été utilisée pour exciter un mode plasmon dans un nano-fil d'or [5]. Néanmoins, cette configuration n'est pas adaptable dans une architecture intégrée. C'est pourquoi nous avons choisi d'utiliser des jonctions tunnels planaires. Dans cette partie, nous détaillerons la méthode de fabrication ainsi que la caractérisation électrique de ces dernières. Nous présenterons également au cours de cette partie une méthode de localisation des jonctions tunnels fabriquées par électro-migration grâce à la génération de second harmonique. Dans un dernier chapitre, nous exposerons les premiers résultats concernant la transduction électron-photon par ces nano structures.

Chapitre 7

Transistor à effet de champ avec un nanotube de carbone (CNFET)

Sommaire

7.1	Les nanotubes de carbone : propriétés électriques et optiques	46
7.2	Electro-luminescence	49
7.3	Réalisation expérimentale et mesures électriques d'un nanotube unique	50
7.4	Réalisation et mesure électrique d'un CNFET	54

Depuis leur découverte en 1991 par S. Iijima [14], les nanotubes de carbone (CNT) sont utilisés dans un nombre croissant d'applications [15]. Ceux-ci possèdent des propriétés exceptionnelles aussi bien dans le domaine de l'électronique ($J=10^{10}$ A.cm⁻² tandis qu'un métal $J=10^5$ A.cm⁻², avec J la densité de courant.), la mécanique ($P=130$ GPa tandis qu'un métal $P=5$ GPa, avec P le module de Young) [15]. Il existe deux types différents de nanotube, les mono feuillets (SWCNT pour single-walled carbon nanotube) et les multi feuillets (MWCNT pour multi-walled carbon nanotube). Dans le cadre de cette thèse, nous avons uniquement utilisé des nanotubes mono feuillets.

Ces objets présentent, dans le cas d'une configuration en transistor à effet de champ, la particularité d'émettre de la lumière [13]. Cette émission, en plus d'être proche de la longueur d'onde Télécom, peut être déplacée le long du nanotube simplement en ajustant la valeur de la tension appliquée sur la grille du transistor. Nous avons dans le cadre de cette thèse voulu développer ce type de source pour l'utiliser comme une source d'excitation de plasmons de surface.

Dans ce chapitre sont présentés les nanotubes ainsi que les résultats expérimentaux obtenus sur la connexion électrique d'un nanotube de carbone unique. Finalement en dernière section de ce chapitre seront présentés les résultats obtenus

sur la fabrication d'un transistor à effet de champ à base de nanotube de carbone ainsi que ses caractéristiques électriques.

7.1 Les nanotubes de carbone : propriétés électriques et optiques

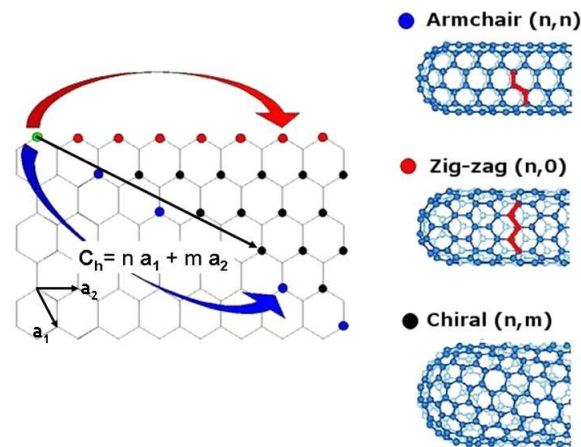


FIGURE 7.1 – Représentation schématique du vecteur chiral sur une matrice hexagonale. Les trois familles de nanotubes sont aussi présentées.

Ces objets sont considérés comme des cylindres unidimensionnels. Leur longueur peut atteindre le millimètre et leur diamètre est compris entre 1 nm et 100 nm. Un nanotube de carbone peut être décomposé comme l'enroulement d'un feuillet de graphène suivant un axe particulier appelé le vecteur chiral (C_h). Celui-ci est défini tel que :

$$\vec{C}_h = n \vec{a}_1 + m \vec{a}_2 = (n, m) \quad (7.1)$$

Généralement un nanotube n'est défini que par la notation (n, m) . Les vecteurs \vec{a}_1 et \vec{a}_2 sont les vecteurs unités définissant la maille hexagonale d'une couche de graphène (cf. figure 7.1). Les nanotubes sont classés dans trois familles différentes en fonction des valeurs du couple (n, m) . Lorsque $n=m$ cette famille est appelée "armchair", pour $m=0$ il s'agit des "zigzag" et enfin dans le cas où $n \neq m$ il s'agit des "chiraux". Un exemple est présenté sur la figure 7.1. A partir des indices n et m il est alors possible de déterminer si le nanotube est métallique ou semi-conducteur. Cette différenciation se résume à vérifier cette équation :

$$n - m = 3j \quad (7.2)$$

Avec j un nombre entier. Dans le cas où cette règle est vérifiée alors les nanotubes sont métalliques, sinon ils sont semi-conducteurs.

La création de nanotubes se fait principalement par les méthodes suivantes : ablation laser de carbone, haute pression de monoxyde de carbone (HiPCO pour High-Pressure carbon monoxyde), croissance par dépôt de vapeur chimique (CVD

pour chemical vapor deposition), décharge électrique [16, 17]. Cependant aucune de ces méthodes ne permet de produire uniquement des nanotubes de carbone semi-conducteurs ou métalliques. A température ambiante les deux tiers des nanotubes sont semi-conducteurs, alors que seulement un tiers sont métalliques.

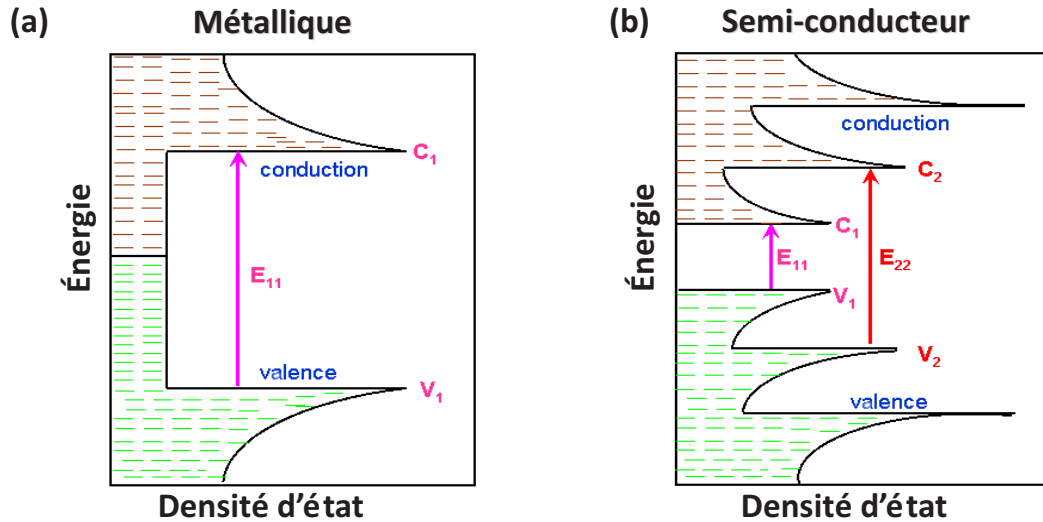


FIGURE 7.2 – Densité d'état d'un nanotube en (a) métallique et en (b) semi-conducteur. Adaptée de [18]

Le fait qu'un CNT soit métallique ou semi-conducteur influe directement sur son diagramme de bande et donc sur sa densité d'états électroniques (DOS pour density of state). Par définition la DOS est obtenue à partir de la structure de bande de l'objet :

$$DOS = \left(\frac{dE_j}{dk} \right)^{-1} \quad (7.3)$$

La structure de bande pour chaque type de nanotubes (métallique ou semi-conducteur) est représentée sur la figure 7.2. La différence dans les DOS se trouve entre la bande valence et de conduction. C'est en effet ces états présents uniquement chez les semi-conducteurs qui leurs permettent d'être aussi intéressant pour les applications d'optoélectroniques. Les singularités de van Hove sont visibles dans les DOS des nanotubes. Les transitions entre les bandes sont couramment appelées " E_{ii} " avec "i" un nombre entier identifiant le niveau (cf. figure 7.2). L'espacement ou plutôt la valeur de la transition E_{ii} est dépendante du diamètre du nanotube. Cette dépendance n'est pas comme pour les émetteurs quantiques simplement proportionnelle à l'inverse du diamètre. La chiralité du tube intervient dans cette dépendance. Sur la figure 7.3 est représentée par un graphique de Kataura cette dépendance de l'énergie de transition pour différentes combinaisons (n, m). La lettre M se réfère à métallique tandis que la lettre S à semi-conducteur. Les nanotubes métalliques sont représentés par les points rouges alors que les semi-conducteurs sont représentés par les points noirs.

Les nanotubes étant des systèmes semi-conducteurs à gap direct, ceux-ci sont d'excellents candidats pour émettre et absorber de la lumière. L'étude de la luminescence des SWCNTs ne fut cependant possible que bien après leur découverte.

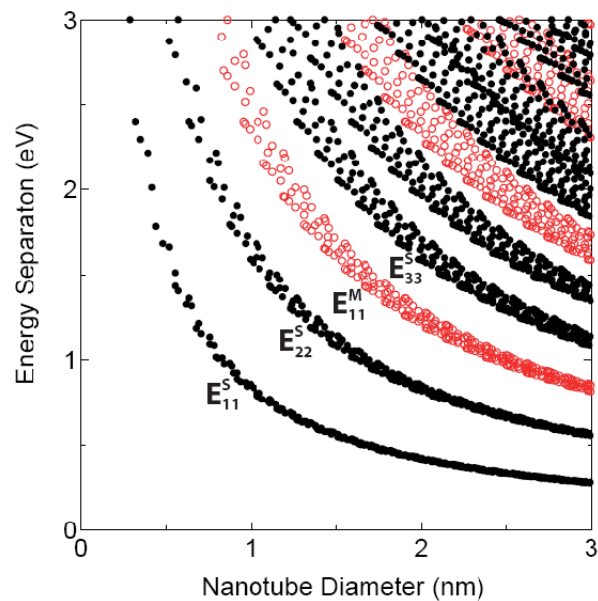


FIGURE 7.3 – Graphique de Kataura représentant l'évolution de l'énergie de transition en fonction du diamètre du nanotube. Les points en noir correspondent à des nanotubes semi-conducteurs et les points rouges à des nanotubes métalliques. Adaptée de [19].

Plusieurs problèmes sont à l'origine de ce retard comme la faible efficacité quantique et l'agrégation des nanotubes entre eux. Il faudra attendre les travaux de O'Connell et ses collègues [20] qui mirent au point un procédé pour déposer un surfactant sur les nanotubes en vue de les isoler. Ils ont utilisé une molécule possédant une extrémité hydrophobe et l'autre hydrophile. Grâce à une agitation dans un bain d'ultrasons, il a alors été possible d'obtenir des nanotubes à simple parois isolés et de mesurer leur spectre d'émission en solution dépendant de leur diamètre d . Plus tard, il a été identifié que cette émission de luminescence était typique de la chiralité des CNTs [21, 22]. Des résultats similaires ont aussi été obtenus dans le cas de SWCNTs déposés sur une surface [23, 24]. Un exemple de cartographie de luminescence est présenté sur la figure 7.4. Sur cette cartographie, différents spots d'intensité de photoluminescence sont présents. Les chiralités de certains spots ont été repérées sur l'image. Dans tous les cas, seuls des nanotubes de la famille "chiral" sont représentés et possèdent une luminescence. Le temps caractéristique de durée de vie de la fluorescence d'un nanotube est comprise entre 10 et 100 ps [25, 26].

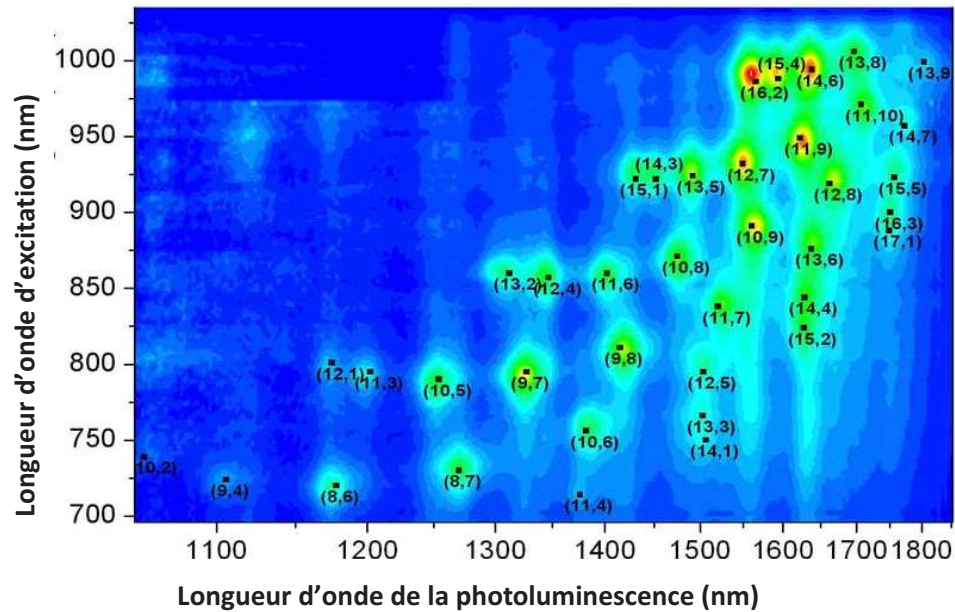


FIGURE 7.4 – Cartographie de l'intensité de photoluminescence en fonction de la longueur d'onde d'excitation pour plusieurs chiralités. Adaptée de [27]

7.2 Electro-luminescence

Différents processus permettent d'obtenir de la lumière grâce à un nanotube de carbone. Celle-ci est notamment présente dans le cas d'un nanotube placé dans une configuration de transistor à effet champ (CNFET pour Carbon nanotube field effect transistor) [10, 13]. Un transistor à effet de champ (FET pour Field effect transistor) est un composant possédant 3 points de contact : la grille (G), la source (S) et le drain (D). La source et le drain sont connectés aux deux extrémités du nanotube et jouent le rôle de réservoirs de trous et d'électrons. Le troisième contact, la grille, contrôle l'injection des charges dans le nanotube. D'une façon plus générale cet élément dans un FET permet l'ouverture ou non du canal de conduction. Dans le cas des nanotubes, la conduction se fait même avec une tension de grille nulle. Le fonctionnement d'un CNFET est très similaire à un MOSFET (Metal-oxyde-semi-conductor FET). Dans le cas où le travail de sortie du métal est supérieur à celui du nanotube alors le CNFET est considéré de type "p" [9, 28], c'est-à-dire que le transistor sera dans l'état "on" pour des tensions de grille négatives. Dans le cas où le métal utilisé pour les contacts a un travail de sortie inférieur à celui du nanotube alors le CNFET sera considéré de type "n" [29, 30], c'est-à-dire que l'état "on" du transistor sera obtenu pour des tensions de grille positives.

L'électroluminescence avec un FET peut être obtenue dans le cas d'un régime dit ambipolaire. Il s'agit dans ce cas d'injecter simultanément des trous et des électrons qui en se recombinant vont créer des photons. Il est alors possible en ajustant la tension de grille de contrôler la position d'émission du spot [13] (déplacement de la zone de recombinaison). Comme pour le processus de photoluminescence, l'émission lumineuse est polarisée dans l'axe du nanotube [9]. L'émission lumineuse est du même type que la photoluminescence et est liée à la fois au diamètre du nanotube

et à l'environnement [31]. L'électroluminescence est aussi possible dans le régime dit unipolaire. Dans ce cas là, les électrons (ou les trous) sont les seuls porteurs à transiter dans le nanotube [32]. Ceux-ci sont considérés comme des porteurs balistiques. A leur arrivée sur les contacts, ils peuvent perdre leur énergie par collision inélastique et donc produire de la lumière. Il est aussi possible que des défauts présents dans la structure, ou des charges présentes dans la couche d'oxyde se recombinent avec celles du nanotube pour former de la lumière.

7.3 Réalisation expérimentale et mesures électriques d'un nanotube unique

Avant de réaliser une source à plasmon à partir d'un CNTFET, nous avons procédé à plusieurs tests préliminaires sur les nanotubes, et notamment vérifié certaines propriétés électriques et optiques d'un nanotube unique. Pour cela nous avons utilisé des substrats de verre isolant (lamelle de verre 22 mm × 22 mm). Sur ces échantillons a été réalisée, grâce à une lithographie par faisceau d'électrons une grille de repérage (cf. annexe A.3). Cette grille est composée de croix qui sont des marques d'alignement et des repères pour effectuer une future connexion des nanotubes (cf. annexe A.4). Elle contient trois tailles de marques différentes, et la plus petite taille est composée d'une lettre et d'un numéro (cf. figure A.4). Nous avons utilisé une solution commerciale de nanotubes. Ceux-ci ont des longueurs comprises entre 300 nm et 5 μm et un diamètre inférieur à 2 nm. Afin d'augmenter le nombre de nanotubes sur la surface, nous activons cette dernière grâce à un plasma d'oxygène. Cette étape permet de rendre la surface hydrophile et donc d'augmenter le nombre de nanotubes déposés sur celle-ci. Dans notre cas, les nanotubes sont dispersés et étalés au moyen d'un spin-coater. Entre le moment du dépôt de la goutte de solution ($\approx 20 \mu\text{L}$ de solution diluée à 1/200 en volume) et du démarrage de la séquence d'étalement, il est nécessaire d'attendre une dizaine de minutes. Ce temps est nécessaire pour que les nanotubes puissent sédimenter sur la surface. Un exemple est donné par l'image AFM sur la figure 7.5 (a). Les nanotubes sont repérés par des cercles en pointillés blancs. Le nombre de nanotubes est suffisant par rapport à la surface concernée (10 μm × 10 μm). Il y a à la fois assez de nanotubes pour qu'ils soient facilement repérables et ils sont assez éloignés pour être sûr de ne connecter qu'un seul tube.

Au cours des tests préliminaires, nous nous sommes rendus compte de plusieurs phénomènes assez contraignants. Le premier concerne l'effet de la résine utilisée pour la lithographie. Nous avons remarqué que lors du retrait de cette dernière (par développement ou lift-off), les nanotubes étaient retirés de la surface. Ceci nous contraint à n'utiliser la résine qu'en dernier lieu. Le second problème vient cette fois du microscope à balayage ou plus particulièrement de la contamination au carbone suite à l'exposition au faisceau d'électron. Après avoir observé une zone à l'aide du MEB, il n'est plus possible de détecter le moindre signal de luminescence de la part des nanotubes. Il est connu depuis quelques temps que l'imagerie par faisceau d'électron dépose sur l'échantillon un film de carbone [33]. Il n'est donc pas impossible que la structure des nanotubes ait changée suite à l'observation au MEB. Cette transformation a pu altérer la réponse optique des CNTs. Il a donc été choisi

de limiter à la fois le nombre d'utilisation de la résine et de n'exposer l'échantillon au MEB que pour réaliser les électrodes de contact.

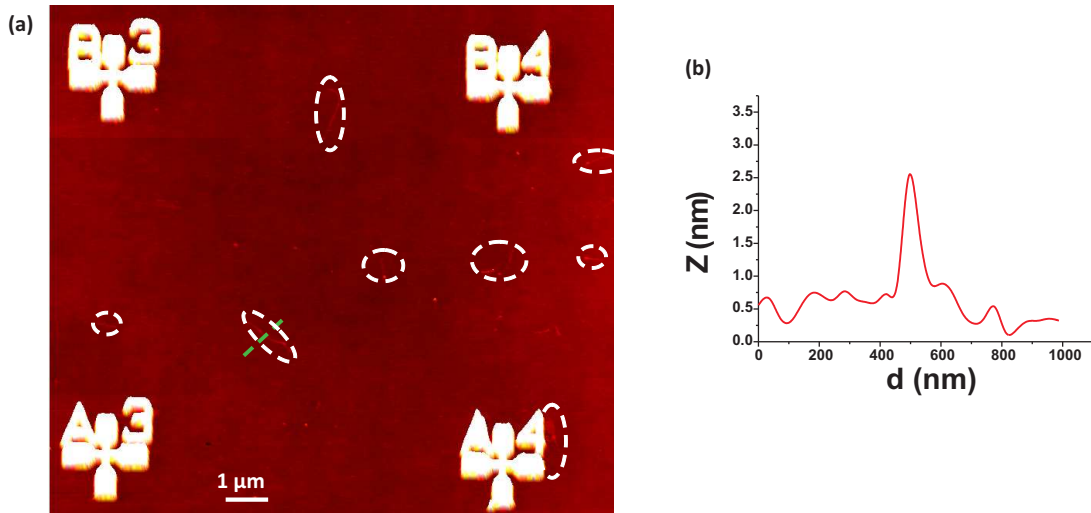


FIGURE 7.5 – (a) Image AFM de nanotubes sur une surface de verre. Les nanotubes sont signalés par des cercles en pointillés blancs. Les motifs en forme de croix sont les marques d'alignements réalisées avec une lithographie à faisceau d'électron. (b) Section suivant la ligne pointillé dans (a) sur un des nanotubes. La hauteur donnée par la mesure AFM pour ce nanotube est de 2 nm.

La méthode utilisée pour fabriquer des transistors à effets de champ est basée sur une localisation AFM additionnée d'une caractérisation confocale des nanotubes. Cette technique est parfaitement étudiée pour tous les types de substrats transparents. Les caractérisations de photoluminescence des nanotubes ont été effectuées sur un microscope confocale. La base est constituée d'un microscope inversé de la marque *Nikon*. L'excitation est réalisée par une source laser continue émettant à 532 nm. Un miroir dichroïque passe haut à 550 nm est inséré dans le trajet lumineux. Ce type de configuration permet de supprimer l'excitation ainsi que toute la diffusion élastique de la lumière et de ne garder que la luminescence. L'excitation ainsi que la détection sont assurées par un objectif à immersion avec une grande ouverture numérique (O.N.=1.49). Le signal collecté est ensuite focalisé sur le capteur d'une photodiode avalanche. Un exemple de cartographie de luminescence comparée avec une image AFM sont présentées sur la figure 7.6. Les marques d'alignements sont visibles sur l'image 7.6 (b) grâce à la photoluminescence de l'or. Ce signal est plus intense que celui des nanotubes. L'image en bas à droite est un zoom saturé de la zone repérée en pointillés blancs. En comparaison avec l'image de luminescence, le même zoom a été effectué sur une topographie AFM (cf. figure 7.6 (a)). La présence du nanotube est clairement identifiable dans les deux zones. La présence de sa luminescence est visible sur l'image saturée, tout comme celui-ci est présent sur l'image AFM. Ce nanotube peut clairement être identifié comme semi-conducteur, contrairement à d'autres qui n'ont aucune réponse optique (ellipse blanche dans les images grand champ). Le fait de pouvoir coupler l'imagerie optique à une topographie nous permet donc de sélectionner efficacement les nanotubes. De plus le fait d'utiliser de

l'or pour créer les marques d'alignement facilite grandement le repérage de la zone observée.

A ce stade, nous avons toutes les informations pour sélectionner un nanotube. Il ne reste plus que l'étape de connexion. Pour cela seule l'imagerie AFM est nécessaire. Grâce aux marques d'alignements réalisées en première lithographie, il est aisé de déterminer la position des extrémités du nanotubes devant être connecté. Ces positions sont ensuite reportées dans le dessin de lithographie et les électrodes sont dessinées en fonction. Le résultat final est présenté sur la figure 7.7.

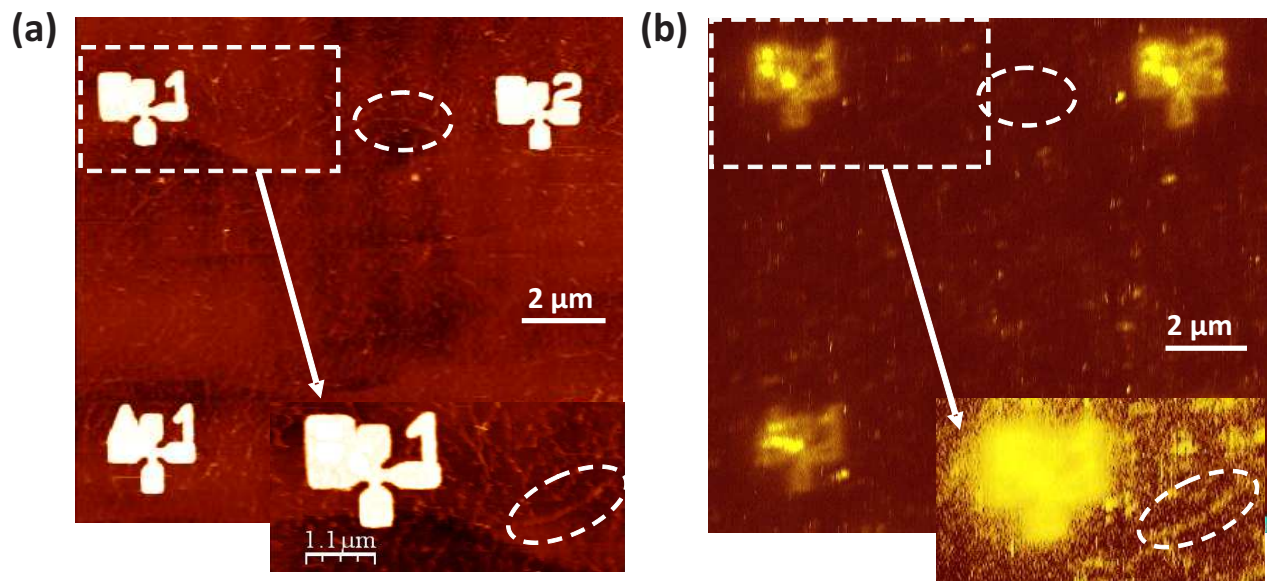


FIGURE 7.6 – (a) Image AFM d'un échantillon avec des nanotubes. (b) Image confo-cale de luminescence de la même zone en (a). En bas à droite de chaque image est représenté un zoom du rectangle en pointillé blanc.

Un des moyens de vérifier si la connexion du nanotube est effective, est de réaliser une caractéristique courant/tension ($I(V)$) de celui-ci. Le substrat choisi étant du verre et les électrodes étant bien séparées, il n'y a pas d'autre possibilité pour le courant que de passer à travers le nanotube si celui-ci se trouve bien connecté. La caractéristique $I(V)$ a été effectuée par un analyseur de composant le modèle 4200-SCS de la marque *Keithley*. Cet appareil permet de mesurer des courants allant de la dizaine de pico-ampères (pA) jusqu'aux milli-ampères (mA) avec une résolution de 1 pA. La mesure réalisée à température ambiante et à l'air libre est représentée sur la figure 7.8. En premier lieu cette caractéristique $I(V)$ donne une information sur le type de nanotube qui est connecté. Il s'agit bien dans ce cas-ci d'un CNT semi-conducteur. A la différence d'un nanotube métallique, la caractéristique $I(V)$ des CNTs semi-conducteurs présente une intensité nulle pour une certaine plage de tension. Cet effet est lié à la résistance entre les contacts et le nanotube. Ce phénomène de barrière Schottky se produit lors du contact entre un métal (électrodes en or) et un semi-conducteur (CNT) à cause des différentes énergies de sortie. Cette barrière se comporte donc comme un frein au passage du courant. Tant que la tension d'extraction des électrons est supérieure à la valeur de la barrière Schottky, ceux-ci peuvent passer à travers le nanotube. Dès que cette valeur devient proche de

celle de la barrière, les électrons ont plus de mal à transiter à travers le nanotube. Finalement lorsque la tension d'extraction n'est plus suffisante, plus aucun électron ne peut passer et donc le courant devient nul. En ne considérant que la partie positive du graphique, il est facile de reconnaître la caractéristique d'une diode Schottky. Les électrodes ayant été fabriquées avec le même matériau, la tension de seuil est symétrique par rapport à 0. Cette tension, dans le cas de ce nanotube, est telle que $|V_s| = \pm 0.2 \text{ V}$. Sur cette courbe $I(V)$ dans son ensemble, il est donc possible de définir deux zones. La première est définie telle que $|V| > |V_s|$. La dépendance du courant dans cette partie est linéaire avec la tension appliquée. Dans la seconde zone, c'est-à-dire $|V| < |V_s|$, le courant est nul. Des travaux ont été réalisés sur la diminution de la barrière Schottky, dans le but d'augmenter l'efficacité des CNFETs [34, 35]. Il ressort de ces études que les métaux à utiliser pour créer les contacts doivent avoir un travail de sortie $\phi > 5 \text{ eV}$. En effet le travail de sortie d'un nanotube de carbone se trouve aux alentours de 5 eV [36]. Ce qui donne comme excellents candidats le palladium ($\approx 5.2 \text{ eV}$) et l'or ($\approx 5.4 \text{ eV}$).

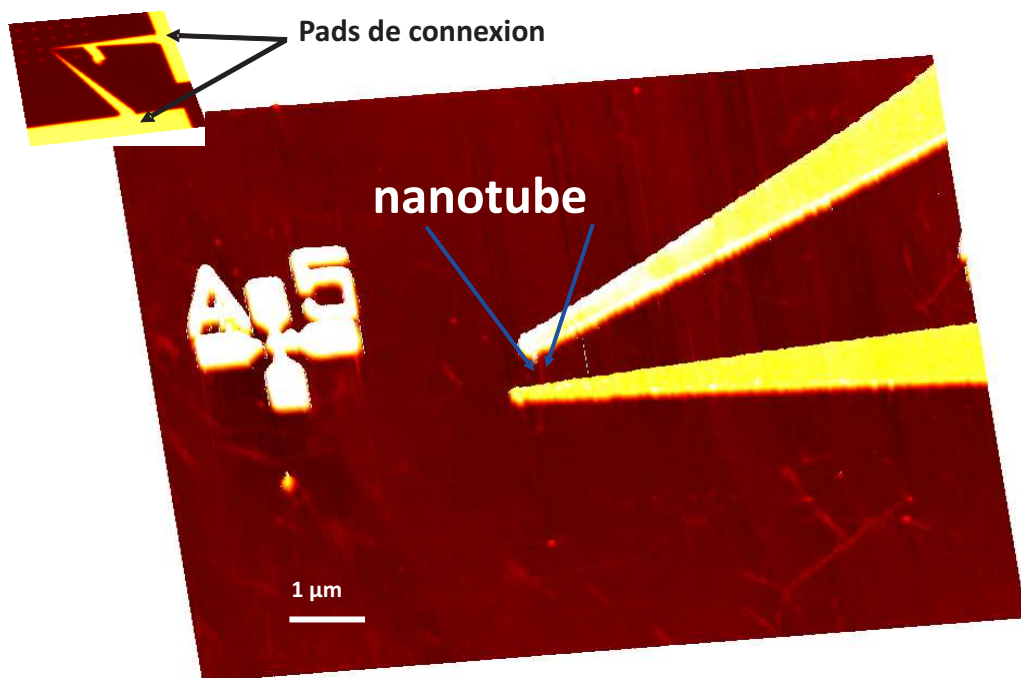


FIGURE 7.7 – Image AFM d'un nanotube sélectionné par imagerie AFM et confocale puis connecté avec deux électrodes en or par lithographie à faisceau d'électron. En haut de l'image est représenté une vue d'ensemble du système. Les électrodes sont bien séparées.

Afin de vérifier la stabilité du système à l'air libre et à pression ambiante, une courbe $I(V)$ aller-retour a été mesurée (cf. figure 7.8). Les deux courbes dans la partie linéaire ne présentent pas tout à fait la même pente. Il y a la présence d'une très faible hystérésis. L'intensité mesurée au retour est plus faible que celle mesurée à l'aller. L'explication de ce comportement peut être donnée par la présence de molécules d'eau. Celles-ci lors de la première mesure sont présentes sur le tube (courbe en noir). Par effet joule, elles sont désorbées de la surface. L'eau étant un excellent conducteur,

le fait de les enlever de la surface du nanotube conduit à une augmentation de la résistance. C'est pourquoi lors du retour (courbe rouge), le courant mesuré est plus bas que précédemment [37]. Une autre possibilité serait que le substrat puisse piéger des charges dans des défauts.

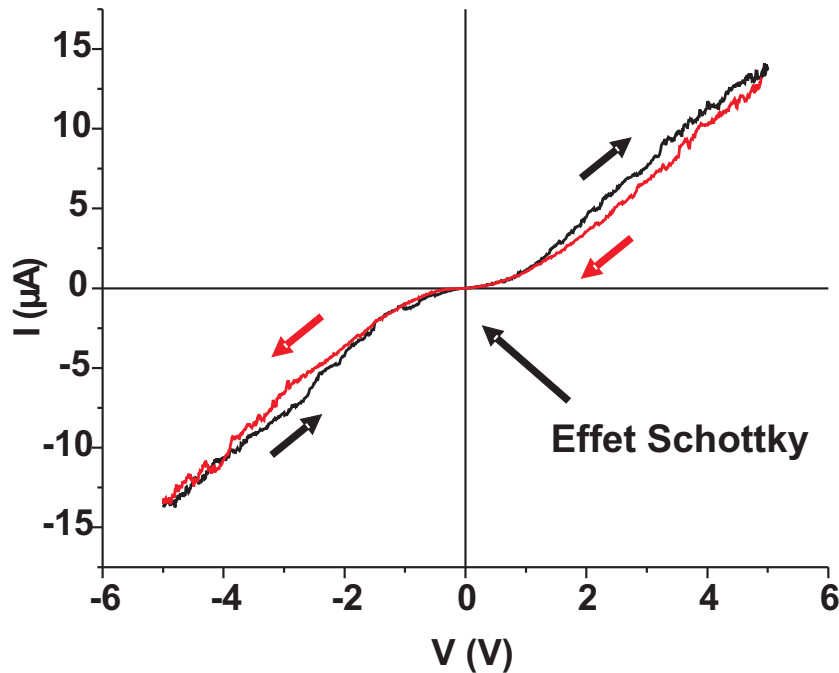


FIGURE 7.8 – Caractéristique courant/tension du nanotube connecté sur la figure 7.7. En noir est représenté l'aller et en rouge le retour.

7.4 Réalisation et mesure électrique d'un CNFET

Ayant montré la faisabilité de connecter un nanotube unique avec des électrodes, nous avons implémenté au système précédent une grille de commande. Afin de conserver la transparence des échantillons, cette dernière est constituée par une couche d'ITO. L'isolation entre la grille et les contacts est assurée par une couche de 100 nm de SiO₂. Les nanotubes sont ensuite déposés comme la méthode précédente sur le dessus de la partie isolée. Le résultat obtenu est présenté sur la figure 7.9. Les contacts métalliques ont été réalisés avec l'évaporation de 10 nm de palladium et 50 nm d'or. Dans le cas présent, le palladium sert à la fois de couche d'adhésion pour l'or et en même temps de faible barrière Schottky avec le nanotube [34]. L'or quant à lui protège le palladium de l'oxydation.

Les caractéristiques électriques de ce transistor ont été mesurées et sont représentées sur la figure 7.10. Ces deux types de courbes ($I_{DS}(V_{DS})$ et $I_{DS}(V_G)$) permettent de caractériser complètement le transistor et de déterminer ses principales propriétés. La première courbe représente la variation du courant mesuré entre le drain et la source en fonction de la tension de grille appliquée. Cette mesure permet de déterminer si le transistor est du type "p" ou "n". En fonction du résultat, la tension de grille à appliquer pour le faire fonctionner ne sera pas la même. Comme

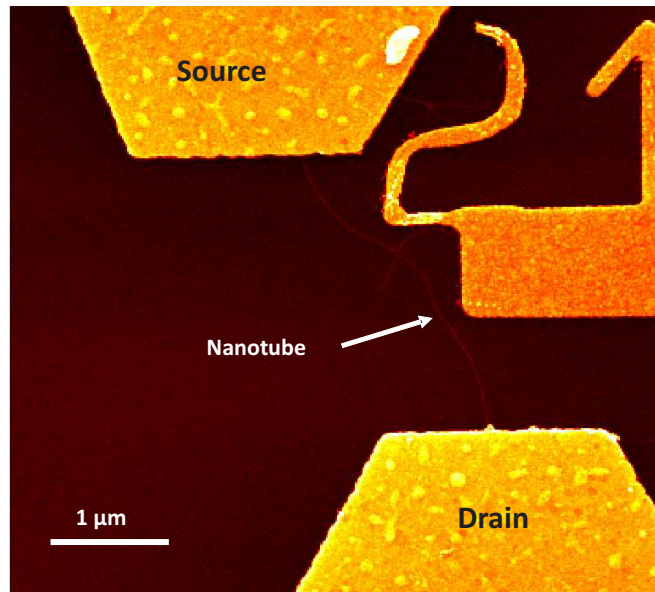


FIGURE 7.9 – Image obtenue à partir d'un MEB d'un nanotube connecté sur un substrat d'ITO et 100 nm de SiO₂ (Image réalisée par Rai P.).

le montre la figure 7.10 (a), ce transistor ne laisse passer un courant que pour des valeurs négatives appliquées sur la grille. Ce comportement est typique d'un CNFET de type "p". La valeur de courant obtenue est cependant assez faible et reste dans la gamme des nano-ampères. Un transistor est défini par le rapport I_{on}/I_{off} . Le calcul de ce rapport s'effectue grâce à la courbe 7.10 (a). Le rapport d'extinction pour ce transistor est de l'ordre $I_{on}/I_{off} = 10^3$. Cette valeur est faible par rapport à celles trouvées dans la littérature ($I_{on}/I_{off} = 10^4$ [28]).

Le type du transistor est maintenant connu, Il est donc possible de mesurer la caractéristique courant/tension entre le drain et la source pour une tension constante appliquée à la grille. Les résultats sont présentés sur la figure 7.10 (b). Lorsque la tension de grille est nulle, il y a très peu de courant qui passe dans le nanotube. Comparée aux courbes présentées sur la figure 7.8, la différence est surtout liée à la longueur du tube. Dans le premier cas (c'est-à-dire sans grille existante), le canal de conduction a une longueur de l'ordre de 500 nm, alors que dans le second cas (c'est-à-dire le CNFET) la longueur du canal est d'environ 2 μm . Cette différence de longueur de canal influe sur les propriétés de conduction du nanotube. L'augmentation de la valeur de $|V_G|$ permet l'ouverture du canal de conduction et donc de placer le transistor dans son état "on". Le fait d'augmenter $|V_G|$ va progressivement changer le type de porteurs autorisés à transiter dans le nanotube [13].

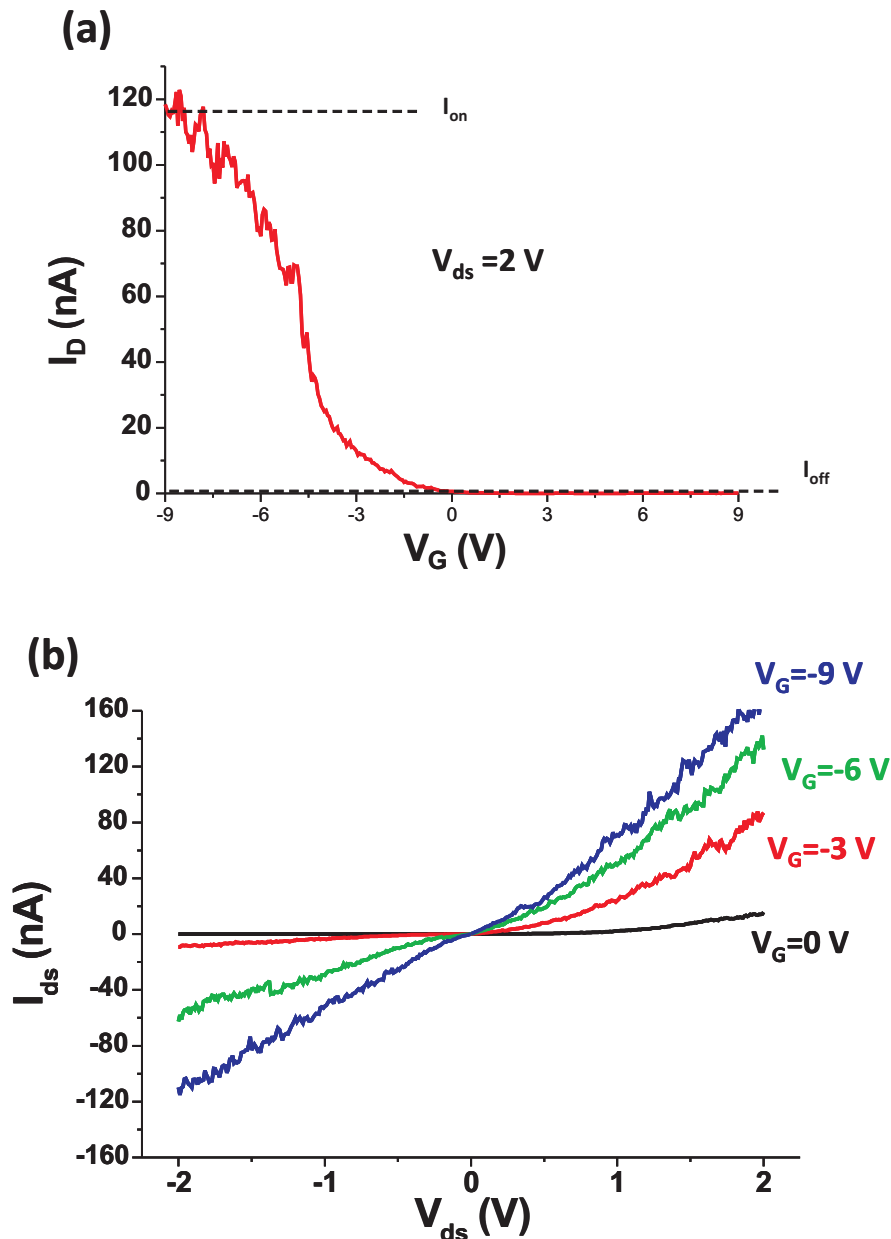


FIGURE 7.10 – (a) Courbe du courant entre le drain et la source en fonction de la tension de grille pour une tension appliquée au drain constante. Ce type de courbe est caractéristique d'un transistor de type "p". (b) Courbe du courant entre la source et le drain pour différentes tensions de grille appliquées (Mesures réalisées par Rai P.).

Arrivé à ce stade de développement de ces composants, la prochaine étape concerne la création d'électroluminescence. Malheureusement, au moment de la rédaction de ce manuscrit de thèse, les expériences sont encore en cours de réalisation. Néanmoins, les nanotubes utilisés ayant un diamètre proche de 1 nm, nous nous attendons à ce que l'électroluminescence soit comprise entre $\lambda=900$ nm et $\lambda=1000$ nm (cf. figure 7.3).

Chapitre 8

Création de jonction sub-nanométrique par électromigration

Sommaire

8.1	Création de jonctions nanométriques par électro-migration	58
8.2	Processus d'électro-migration	58
8.3	Fabrication de jonctions nanométriques	59
8.4	Caractérisation électrique des nano-jonctions	62

Nous avons vu dans le chapitre précédent la première configuration de source à plasmon à base d'antenne optique développée dans le cadre de cette thèse. Dans ce système, l'antenne est constituée par un nanotube de carbone connecté à deux électrodes métalliques. La création de l'électroluminescence est alors possible par une recombinaison radiative des charges transitant dans le nanotube. Toutefois, cette luminescence peut être directement réalisée par un système uniquement composé de deux électrodes métalliques. C'est notamment le cas pour les jonctions MIMs ou les jonctions tunnels constituées entre une pointe d'un STM et une surface métallique. Pour les jonctions MIMs, celles-ci sont des sources électroluminescentes non locales, alors que pour le STM, c'est l'intégration du système qui pose problème. Pour résoudre ces problèmes et utiliser les atouts de ces deux configurations, nous avons choisi de développer des jonctions tunnels planaires. Celles-ci ont été réalisées en empruntant un processus courant de l'électronique moléculaire : l'électro-migration.

8.1 Création de jonctions nanométriques par électro-migration

Le phénomène d'électro-migration est connu depuis très longtemps dans le domaine de l'électronique. Cet effet fut découvert en 1861 par M. Gérardin [38]. Il s'était intéressé à faire passer un courant électrique à travers différents métaux de conduction et à en regarder les effets. Il s'aperçut que le métal subissait des modifications lorsqu'il était soumis à un fort courant. Il remarqua aussi que les endroits où apparaissaient les déformations pouvaient se "réparer" en inversant le sens du courant. Cependant aucune explication ne put être donnée pour cet effet, car à l'époque l'existence des électrons n'avait pas encore été démontrée. Il faudra attendre 1907 avec les travaux de F. Skaupy [39] pour avoir la première explication raisonnable. Ses travaux ont montré que les électrons ainsi que leur dynamique ont un rôle important dans ce processus. Il introduisit la notion de "flux d'électrons" (electron wind).

Ce phénomène d'électro-migration ne représentera un réel intérêt qu'à partir des années 1960 avec l'émergence des circuits intégrés. En effet ce problème est devenu préoccupant dans le cas des lignes d'interconnexions. Les densités de courant mises en jeu sont supérieures à 10^{10} A.m⁻² sans que le conducteur subissent de dommages. Cependant avec la miniaturisation de ses pistes métalliques, la densité de courant à travers les conducteurs a aussi augmenté. Cette conséquence a eu pour effet d'augmenter les problèmes liés à l'électro-migration, et permis dans un même temps le développement d'autres technologies.

8.2 Processus d'électro-migration

L'électro-migration se définit comme un transport de masse résultant d'un échange de moment entre les électrons de conduction et les ions du métal. Il résulte de ce phénomène une rupture du fil métallique. Lorsqu'une tension est appliquée à un métal, les électrons de celui-ci se déplacent de la cathode (polarité négative) vers l'anode (polarité positive). Les objets métalliques n'étant pas parfaits, ceux-ci présentent une résistance qui freine les électrons. Ces défauts au niveau de la structure cristalline sont sujets à de nombreuses collisions par les électrons. Plus la valeur de la tension appliquée devient grande, plus la vitesse des électrons augmente et donc l'énergie transférée par les collisions devient importante. A partir d'un certain seuil, l'énergie transférée devient suffisante pour forcer les atomes de la structure à se mouvoir. La force associée à ce phénomène est composée de deux contributions opposées. L'application d'un potentiel électrique sur un conducteur métallique conduit à créer une force électrique définie par :

$$\mathbf{F}_{\text{elect}} = -qZ\mathbf{E}, \quad (8.1)$$

avec "q" la charge élémentaire d'un électron, "Z" le nombre d'électrons effectifs, \mathbf{E} le champ électrique appliqué. Cette force est décomposable en deux contributions toutes deux proportionnelles au champ électrique appliqué :

$$\mathbf{F}_{\text{elect}} = \mathbf{F}_{\text{wind}} + \mathbf{F}_{\text{direct}} \quad (8.2)$$

Avec \mathbf{F}_{wind} qui est reliée au trajet des électrons et $\mathbf{F}_{\text{direct}}$ qui est reliée au trajet des ions. Sur la figure 8.1 est représentée un schéma montrant la direction des forces concernées par l'électro-migration. Les forces sont en opposition car les éléments mis en cause sont de charges opposées. L'électro-migration est sensible à la fois à la densité de courant et à l'effet Joule. Ces deux phénomènes sont très étroitement liés. L'effet Joule est la manifestation thermique de la résistance électrique du matériau. Cet effet est dépendant quadratiquement au courant traversant le conducteur. Cependant, pour que le processus ait lieu, il est nécessaire d'avoir une densité de courant minimum. Il a été montré que pour déformer un fil de quelques centaines de nanomètres de large avec une hauteur de quelques dizaines de nanomètres, la densité de courant devait être de l'ordre de 10^{12} A.m⁻² [40]. Toutefois, cette valeur a été obtenue dans le cas où l'électro-migration est effectuée à 77 K. A température ambiante la densité de courant nécessaire doit être inférieure par l'ajout de l'agitation thermique.

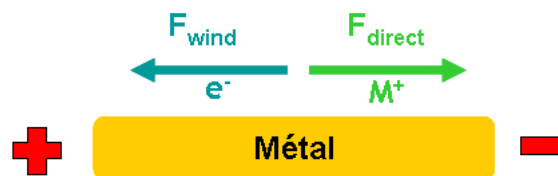


FIGURE 8.1 – Représentation schématique de la direction des forces responsables de l'électro-migration.

A partir du moment où ce processus est commencé, il n'existe aucun moyen pour l'arrêter. Cette conséquence a été montrée par Heersche et ses collègues [41]. Ils ont réalisé une observation in situ de la formation d'une jonction par électro-migration grâce à un microscope électronique en transmission. Leur expérience a consisté à démarrer le processus d'électro-migration sur un nano-fil et d'observer l'évolution de celui-ci sans appliquer de tension. Ils se sont aperçus que le matériau subissait une réorganisation des charges électriques qui conduisait inéluctablement à sa cassure. Les gaps qu'ils ont obtenu par cette technique de "self-breaking" sont de l'ordre de 5 à 6 nm. Depuis quelques années maintenant, les jonctions électro-migrées sont utilisées comme détecteurs [11, 42] ou composants électroniques [43]

8.3 Fabrication de jonctions nanométriques

Le principe de l'électro-migration a été appliqué pour la première fois à la création de nano jonction par H. Park et ses collègues [40]. Il ne s'agit cependant pas de la seule méthode pour obtenir des jonctions tunnels [44, 45], mais toutes permettent l'obtention d'un espacement entre deux électrodes allant de quelques angströms à quelques nanomètres. Ces jonctions servent surtout dans l'électronique moléculaire [46]. La technique d'électro-migration a cependant l'avantage de ne pas nécessiter un équipement trop sophistiqué et est donc facilement réalisable. A l'aide des techniques de lithographies (cf. annexe A), des nano-fils d'or connectés à un jeu d'électrodes

d'or macroscopiques ont été réalisés. La première étape de lithographie concerne la création des pads de connexion ainsi que des électrodes macroscopiques. Celle-ci a été réalisée grâce à une photolithographie UV en mode contact. L'échantillon est ensuite préparé pour une seconde étape de lithographie afin de créer les nano-fils et de les relier aux électrodes pour pouvoir appliquer une tension. Cette étape est réalisée par une lithographie à faisceau d'électron multi-niveaux (cf. annexe A.4). Une étape supplémentaire est ajoutée pour réaliser cette lithographie. En effet le substrat choisi étant isolant, il est nécessaire d'évaporer au dessus de la résine une couche sacrificielle de conduction. Dans notre cas, il s'agit d'une couche de 10 à 20 nm d'or évaporé par un plasma d'argon sous une pression de 7.6 mbar. Les caractéristiques des nano-fils sont : 100 nm de large, 50 nm d'épaisseur et une longueur de 4 μm (cf. figure 8.2).

Pour appliquer la tension et réaliser l'électro-migration, nous avons choisi d'utiliser des fils blindés de faible diamètre ($\emptyset < 2$ mm). Pour assurer un bon contact électrique entre les extrémités des fils et les électrodes en or, ceux-ci sont collés avec de la laque d'argent. L'application de la tension ainsi que la mesure du courant électrique sont réalisés grâce à l'analyseur de semi-conducteur 4200-SCS. Contrairement à H. Park et ses collègues [40], nous avons choisi de réaliser le processus d'électro-migration à température ambiante et à pression atmosphérique. Ces conditions expérimentales permettant d'obtenir des nano-jonctions par le processus d'électro-migration [46, 47].

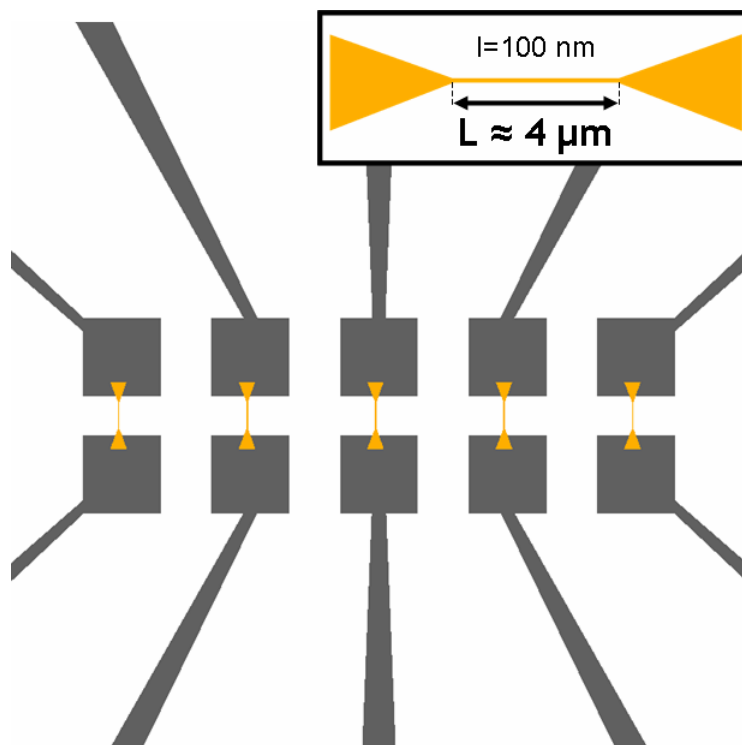


FIGURE 8.2 – Représentation graphique des nano-fils (en jaune) connectés aux électrodes UV (en gris).

Sur la figure 8.3 (a) est représentée la mesure du courant en fonction de la tension appliquée sur un nano-fil lithographié. Il apparaît sur cette courbe trois zones de tensions pour lesquelles le comportement du nano-fil n'est pas le même. La première

zone est repérée en vert sur le graphique. Dans cette partie la tension augmente de façon linéaire avec le courant. Il s'agit bien du comportement d'un conducteur métallique (loi d'Ohm). En bleu est repéré la seconde zone, celle-ci s'étendant de $V=0.7$ V jusqu'à $V=0.95$ V. Dans cette région, la pente de la courbe change de valeur. Celle-ci passe de $R_1=200 \Omega$ à $R_2=270 \Omega$. Cette augmentation de la résistance montre que le fil a changé. Cette dernière est donnée dans le cas d'un fil par la relation suivante :

$$R = \rho \frac{l}{S}, \quad (8.3)$$

avec ρ la résistivité du matériaux exprimée en $\Omega.m$, l et S sont respectivement la longueur et la section du fil. Dans notre cas seul S peut varier. Le fait que celui-ci diminue conduit bien à une augmentation de la résistance. Cette signature traduit un commencement du processus d'électro-migration mais que la densité de courant n'est pas encore suffisante pour le rompre. Au delà de $V=0.95$ V (zone en jaune), le courant chute brutalement. La densité de courant pour cette tension V est suffisante pour créer une jonction sur le nano-fil.

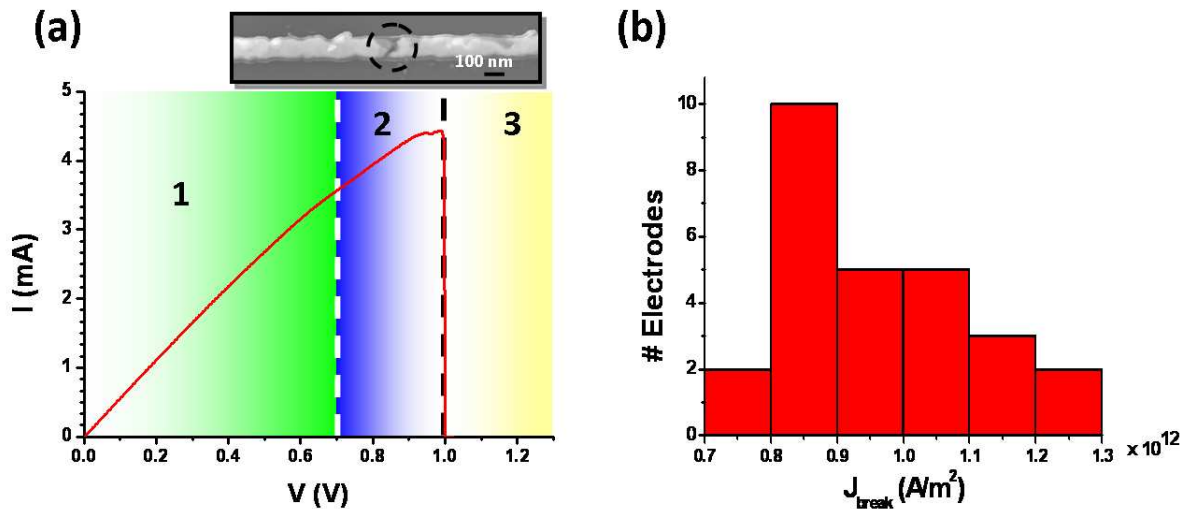


FIGURE 8.3 – a) Caractéristique courant/tension pour un nano-fil. En haut est insérée une image MEB du nano-fil après électro-migration. La nano jonction est bien visible sur le nano-fil et son espacement est de quelques nanomètres. b) Statistique sur la densité de courant avant rupture des nano-fils.

Sur la figure 8.3 (b) est représentée une statistique sur la densité de courant maximum mesuré sur un lot de nano-fils avant leur rupture. La plupart d'entre-eux cèdent avec une densité de courant proche de $1 \times 10^{12} \text{ A.m}^{-2}$. L'électro-migration nécessite donc bien une densité de courant seuil. Le fait que celle-ci soit différente d'un nano-fil à un autre est liée à la résistance de contact entre les fils blindés et les électrodes. Dans le cadre de nos mesures, la résistance moyenne du système (" *fils blindés + nano-fil + électrodes* ") est égale à $R_{sys} = 147 \pm 51 \Omega$. Les nano-fils réalisés par lithographie dans le cadre de ces expériences supportent des densités de courant comprises entre $0.8 \times 10^{12} \text{ A.m}^{-2}$ et $1.1 \times 10^{12} \text{ A.m}^{-2}$ avant leurs ruptures. La position d'une jonction n'est pas prédictible et se fait souvent sur un défaut de la

structure cristalline du matériau [48, 49, 50]. Dans le cas où celle-ci est parfaitement organisée, la jonction a plutôt tendance à se former au niveau des contacts fabriqués par lithographie électronique [51].

Grâce à une imagerie par microscopie électronique à balayage, il a été possible de vérifier la présence d'une jonction nanométrique sur le nano-fil après le processus d'électro-migration. Comme le montre la figure 8.4, il y a bien la formation d'un espacement sur ce dernier. Contrairement à une jonction fabriquée, celles obtenues par électro-migration sont de forme plus arbitraires [52].

Le contrôle de la taille du gap final est possible en contrôlant la valeur de la conductance ($G=1/R$) [40], ou en effectuant des rampes successives de tension en contrôlant la valeur du courant [46]. La première méthode se base sur le quantum de conductance. Cette valeur appelée $G_0=2e^2/h = 7.6 \times 10^{-5}$ S, est définie comme étant la conductance pour un unique point de contact. Elle permet notamment de quantifier la conductance d'un conducteur lorsque les dimensions de celui-ci tendent vers les dimensions atomiques. Toutefois, cette technique requiert d'être à température cryogénique. Cette solution n'étant pas envisageable dans notre cas, nous avons plutôt opté pour la seconde technique. Cette méthode consiste à réaliser des rampes partielles en minimisant au maximum le pas de mesure. L'application de ces rampes successives a pour but d'affiner au maximum la structure avant la rupture. Avec cette technique, il a été possible d'obtenir des jonctions possédant des caractéristiques tunnels.

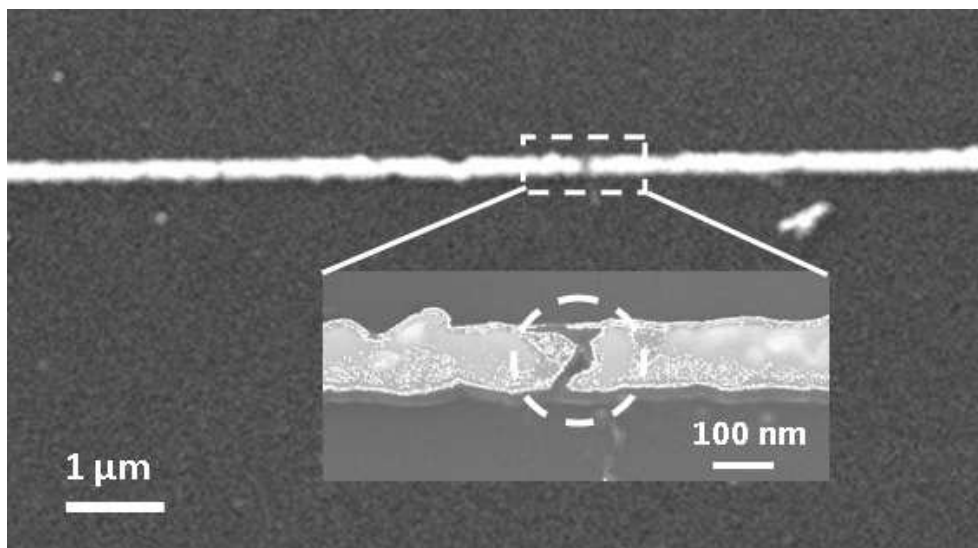


FIGURE 8.4 – Image obtenue à partir d'un microscope électronique à balayage (MEB) d'une jonction nanométrique fabriquée grâce au processus d'électro-migration. Le contour de la structure a été redessiné en trait blanc.

8.4 Caractérisation électrique des nano-jonctions

Lorsque la distance séparant deux électrodes est faible, il y a création d'un courant tunnel. Lorsqu'un électron, ou de façon plus générale une particule, ren-

contre une barrière de potentiel $\phi(z, V)$, celle-ci peut être réfléchiée ou transmise. Si l'épaisseur de la barrière n'est pas trop importante alors on parle de barrière tunnel. Vu les dimensions de notre système, nous pouvons considérer en première approximation que les jonctions électro-migrées sont des barrières tunnels unidimensionnelles. Une représentation schématique est donnée par la figure 8.5.

Lorsqu'une différence de potentiel V allant de gauche vers droite est appliquée entre les électrodes, le potentiel $\phi(z, V)$ peut être décrit sous la forme :

$$\phi(z, V) = E_F + \phi_g - (\phi_g - \phi_d + qV)\frac{z}{d}, \quad (8.4)$$

où z définit l'axe de propagation des électrons, d la largeur de la barrière tunnel et q la charge de l'électron. ϕ_g et ϕ_d sont les énergies de sortie (ou d'extraction) respectivement de l'électrode de gauche et l'électrode de droite et E_F représente le niveau d'énergie de Fermi. Le courant tunnel obtenu est directement lié à la probabilité de transmission $T(E, V)$ des électrons à travers la barrière. Dans l'approximation de Wentzel-Kramers-Brillouin (WKB) celle-ci s'écrit sous la forme [53] :

$$T(E, V) = \exp\left(-\int_{s_1}^{s_2} \frac{2}{\hbar} \sqrt{2m[\phi(z, V) - E]} dz\right), \quad (8.5)$$

avec $\phi(z, V)$ correspondant au potentiel le long de la jonction et E l'énergie des électrons. s_1 et s_2 sont définis comme $0 \leq s_1 \leq s_2 \leq d$ et sont des solutions de l'équation $\phi(z, V) - E = 0$.

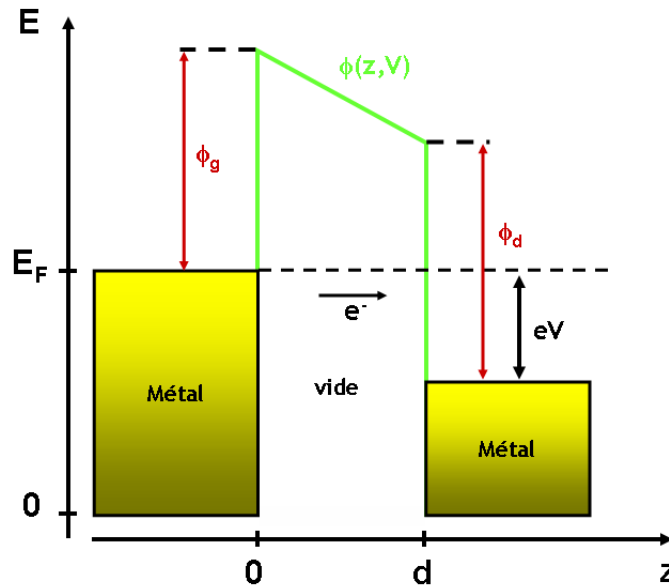


FIGURE 8.5 – Schéma d'une barrière de potentiel tunnel

L'expression du courant tunnel dans un conducteur est décrite au moyen du formalisme de Landauer-Büttiker [54]. Il s'exprime alors sous la forme :

$$I(V) \propto \int_0^\infty [f_g(E) - f_d(E)] \times \sum_{i=1}^N T_i(E, V) dE, \quad (8.6)$$

avec f_g et f_d les densités d'états électroniques pour respectivement l'électrode de gauche et de droite. N représente le nombre de canaux de conduction du système et $T_i(E, V)$ représente la probabilité de transmission à travers la barrière pour le canal i . Dans le cas où il ne subsiste qu'un seul canal, c'est-à-dire pour des distances entre les électrodes très faible, cette expression peut être réécrite sous la forme :

$$I(V) \propto \int_0^\infty [f_g(E) - f_d(E)]T(E, V)dE. \quad (8.7)$$

En fonction de la valeur de la tension appliquée, le courant tunnel n'évoluera pas dans le même régime (cf. figure 8.6). Il est possible de considérer deux régimes de transport, le régime dit tunnel et le régime d'émission de champ.

Régime tunnel : $qV \ll \phi_g, \phi_d$

Dans ce cas là, la tension appliquée est faible par rapport à l'énergie de sortie des électrons. La barrière tunnel est de ce fait peu déformée par l'application de la tension. Il est alors possible de définir une énergie de sortie moyenne telle que $\tilde{\phi} = \frac{\phi_g + \phi_d}{2}$. L'expression du courant tunnel dans ce cas là devient :

$$I(eV \ll \tilde{\phi}) \propto V \exp\left(-\frac{d}{\hbar} \sqrt{8m\tilde{\phi}}\right). \quad (8.8)$$

Cette expression est à l'origine du modèle utilisé pour caractériser des jonctions tunnels planaires développé par Simmons en 1963 [55].

Régime d'émission de champ : $qV > \phi_g, \phi_d$

Dans ce type de régime, la tension déforme la barrière tunnel. Cette dernière n'est plus de forme trapézoïdale mais trigonale, réduisant ainsi la largeur de la jonction. Il ne s'agit donc plus d'une largeur exacte de la jonction mais d'une largeur effective. L'expression du courant tunnel est donnée par l'expression :

$$I(eV \gg \phi) \propto V^2 \exp\left(-\frac{2d\phi^{3/2}}{3qV} \sqrt{\frac{8m}{\hbar^2}}\right). \quad (8.9)$$

Dans ce cas là, ϕ correspond au travail de sortie de l'électrode d'où partent les électrons, l'autre énergie de sortie étant négligée.

Sur la figure 8.6 est représentée une courbe $I(V)$ pour une jonction électromigrée. Le courant contrairement à un conducteur métallique n'est plus linéaire avec la tension. La caractéristique n'étant pas symétrique, implique que les fonctions ϕ des deux électrodes sont différentes. Ce type de comportement a déjà été observé dans le cas de jonctions électromigrées [56]. Cette différence peut être liée à une contamination des électrodes (mesure à l'air libre) ainsi qu'à une éventuelle configuration cristalline différente pour chaque électrode (ϕ dans le cas de l'or est dépendant de l'orientation cristalline). Pour différencier le régime électrique dans lequel évoluent les jonctions tunnels, il est nécessaire de réaliser une représentation de Fowler-Nordheim (FN)[57]. Celle-ci consiste à représenter non pas I en fonction

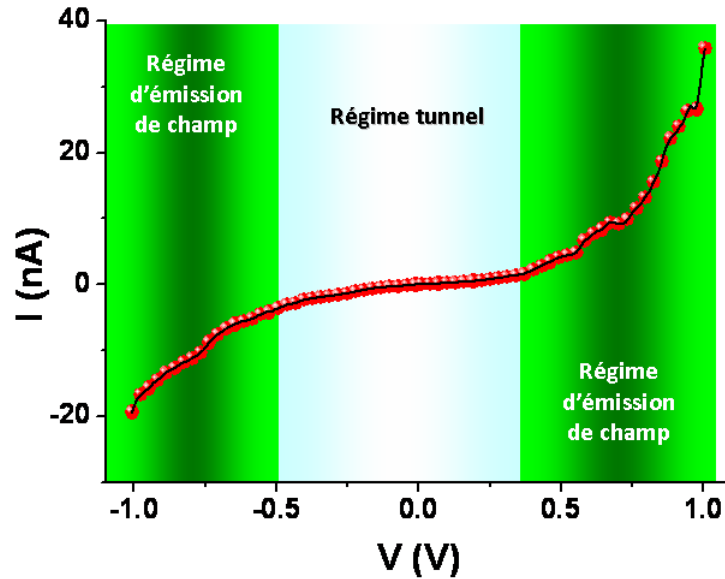


FIGURE 8.6 – Graphique représentant le courant tunnel d’une jonction électromigrée. En bleu sur le graphique sont représentées les zones où le régime de transport est tunnel, alors qu’en vert est représenté la zone d’émission de champ.

de V mais la quantité $\ln(|I|/V^2)$ en fonction de $1/V$. Nous avons donc appliqué cette transformation sur les caractéristiques courant/tension. Le résultat est présenté sur la figure 8.7. Comme il s’agit d’une fonction logarithmique, celle-ci diverge en 0. Cette courbe est décomposable en deux parties : une partie linéaire pour les faibles valeurs de $|1/V|$, et une partie non linéaire pour les fortes valeurs de $|1/V|$. Le point où se rejoignent ses deux courbes définit le domaine d’existence de chaque régime de transport. En exprimant la quantité $\ln(|I|/V^2)$ dans les équations de transport (8.8) et (8.9), il est alors possible de faire apparaître la dépendance des deux régimes (tunnel et effet de champ) par rapport à la quantité $1/V$ [58].

$$\ln(|I|/V^2) \propto \begin{cases} \ln(1/V) - \frac{d\sqrt{8m\phi}}{h} & \text{pour le régime tunnel} \\ -\frac{2d\sqrt{8m\phi^3}}{3hq} \frac{1}{V} & \text{pour le régime effet de champ} \end{cases}$$

D’après ces équations, un régime par effet de champ est donc caractérisé dans une représentation de FN, par une évolution linéaire alors que pour le régime tunnel l’évolution est non linéaire. La rencontre des deux courbes correspond donc à la valeur du travail de sortie de l’électrode considérée en fonction du signe de $1/V$ [59]. Le domaine d’existence de chaque régime a été reporté sur les graphiques de la figure 8.7 ainsi que sur la figure 8.6. Dans le cas de la jonction présentée ici, le domaine d’existence du courant tunnel est limité à des valeurs de $|V|$ comprises entre 0 et 0.5 V. Il est aussi important de noter que la partie linéaire représentant le régime d’effet de champ n’est pas de la même taille pour les tensions positives et négatives. Ce comportement traduit donc une hauteur de barrière différente pour chaque électrode et est cohérent avec la dissymétrie observée dans la mesure du courant.

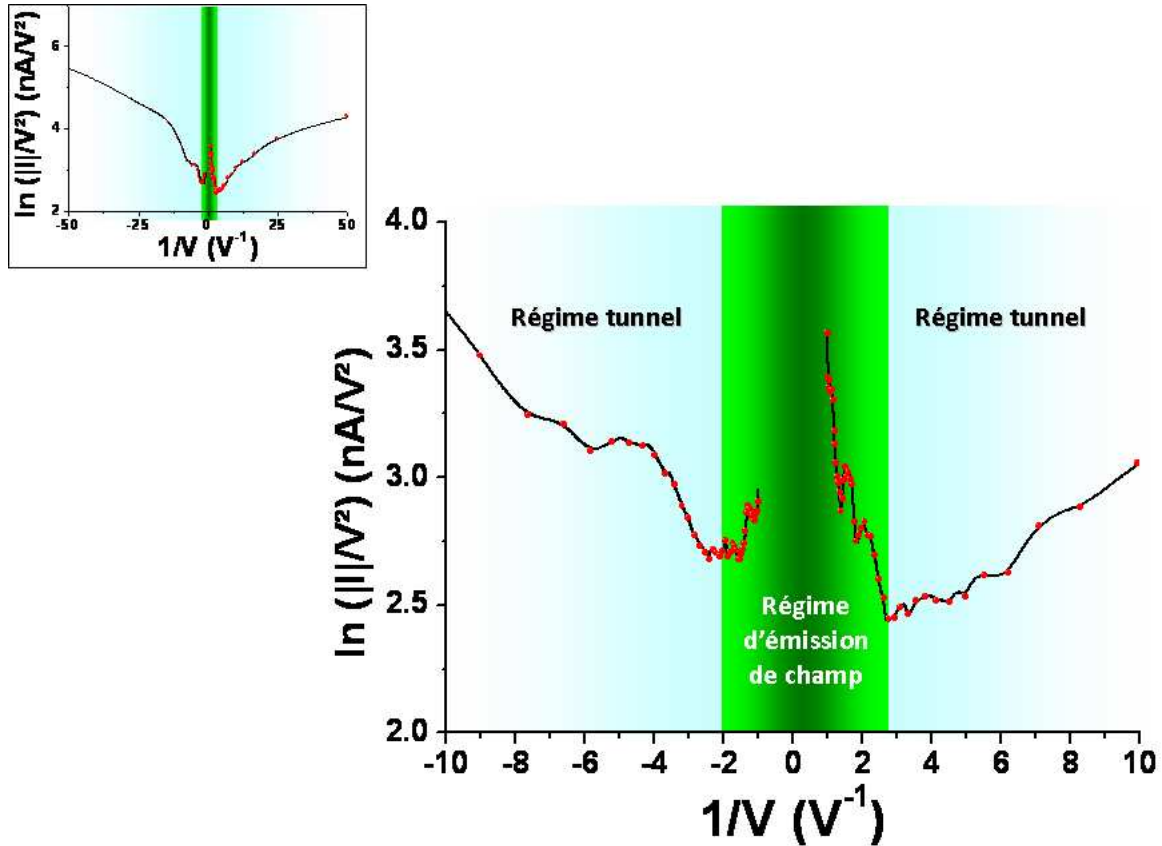


FIGURE 8.7 – Représentation de type Fowler-Nordheim pour une jonction tunnel obtenue par électro-migration.

Dans le cas d'un régime de courant tunnel classique, il est aussi intéressant de mesurer la différentielle du courant tunnel dI/dV (aussi appelée conductance différentielle). Cette mesure de la différentielle de conductance est très utilisée dans le domaine de la spectroscopie tunnel [60]. Elle permet notamment de remonter à la densité d'état électronique du matériau mesuré. Dans le cas d'un objet semi-conducteur, il est alors possible d'obtenir la valeur en énergie de la transition interbande. Dans notre cas il s'agit d'un objet métallique, et plus particulièrement de l'or. Les métaux ont par définition leur niveau de Fermi qui se situe dans la bande de conduction, contrairement aux semi-conducteurs qui se trouve entre la bande de valence et de conduction.

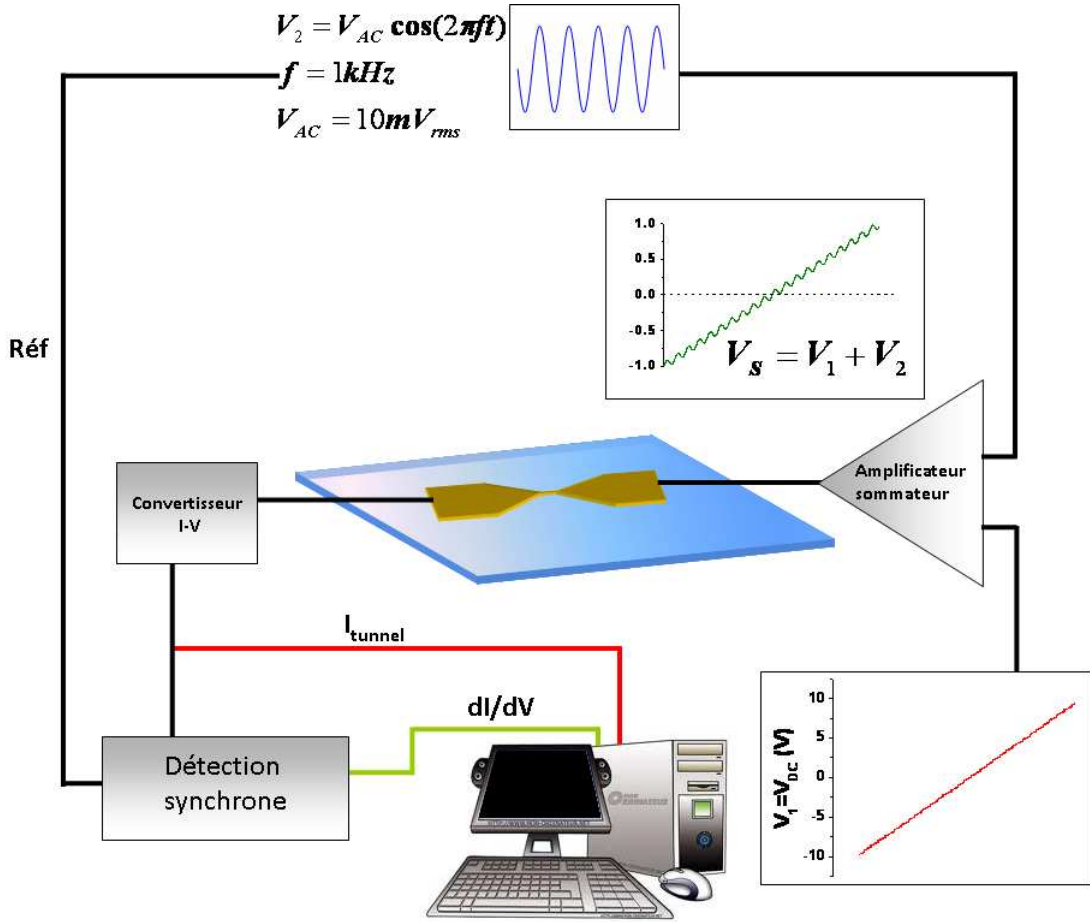


FIGURE 8.8 – Représentation schématique du système de mesure électrique utilisé.

Pourquoi porter un intérêt à cette grandeur ? Il se trouve que la conductance différentielle permet à tension nulle de déterminer l'espacement entre les électrodes [42, 56, 59, 61]. Celle-ci est alors reliée à la conductance tunnel G par la relation suivante :

$$\left. \frac{dI}{dV} \right|_{V=0} \approx G_0 e^{-\beta d} \quad (8.10)$$

avec $\beta = \sqrt{\frac{8m\phi}{\hbar^2}}$ exprimé le plus souvent en Angström⁻¹ (\AA^{-1}). L'espacement d entre les électrodes est donc donné par la relation :

$$d = \frac{-1}{\beta} \ln(G/G_0). \quad (8.11)$$

La grandeur G/G_0 peut être obtenue de façon expérimentale, seule β reste à déterminer. Celle-ci est dépendante de la fonction de sortie du métal $\phi(d, V)$. Dans le cas du matériau massif, elle varie pour de l'or entre 5.3 eV et 5.5 eV [62]. Comme nous l'avons vu précédemment, grâce à une représentation de Fowler-Nordheim il est possible de déterminer la valeur de cette fonction de sortie. La tension du point d'inflexion dans la représentation de FN représente une valeur estimée pour ϕ [58]. Cette dernière étant dépendante de la distance d , elle varie d'une jonction à une

autre. Comme nous souhaitons seulement avoir une estimation de d , nous avons calculé une valeur moyenne parmi un lot de jonction. Dans notre cas la valeur moyenne obtenue est de l'ordre de $\tilde{\phi}=0.8 \pm 0.4$ eV. Il a été montré récemment que dans le cas de jonctions nanométriques planaires, la valeur de la fonction de sortie était différente de l'or massif [42, 56]. Cet effet a déjà été observé dans le cas du STM [63]. Dans le cas de A. Mangin et ses collègues [56], ils ont obtenu des valeurs comprises entre 0.2 et 4 eV, alors que pour D. Ward et ses collègues [42], ils ont retenu une valeur moyenne pour ϕ de 3.7 eV. Dans ce second cas, cette valeur a été obtenue de façon numérique. Ces différents résultats montrent bien que la fonction de sortie d'un métal dans le cas de jonctions planaires n'est pas le même que pour un métal massif. Il semblerait que cette diminution de l'énergie de sortie soit liée à une contamination des contacts par l'absorption d'impuretés (eau, carbone, etc.) [56]. Le fait que la valeur de la fonction de sortie de l'électrode de droite soit différente de l'électrode de gauche n'est pas contraignant pour mesurer la largeur de la jonction. En effet dans le cas du régime tunnel, la fonction de sortie est une valeur moyenne (cf. équation 8.8). Nous avons donc déterminé une valeur de β à partir de $\tilde{\phi}$. Pour toutes les mesures de distances effectuées, la valeur de β a été prise constante et égale à $\beta=9$ nm⁻¹.

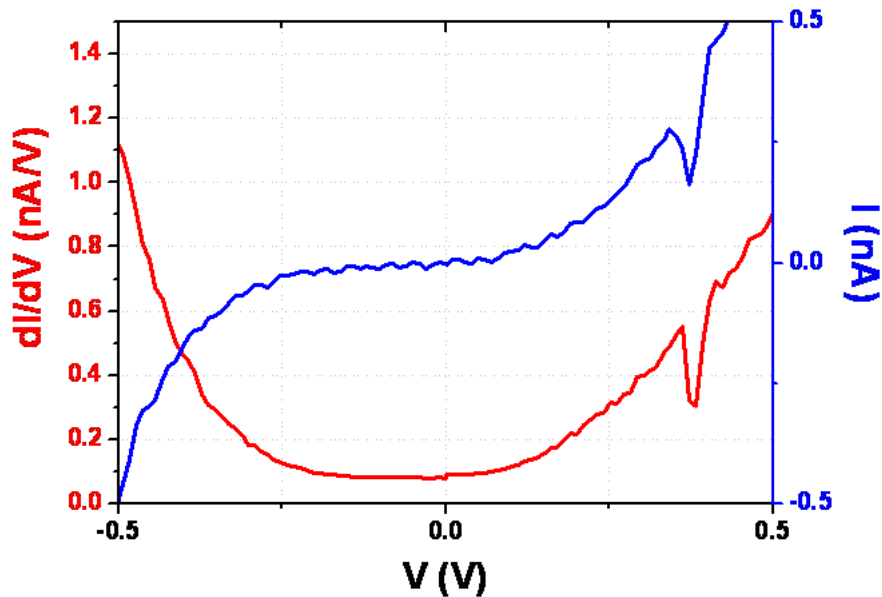


FIGURE 8.9 – Représentation de la différentielle du courant tunnel (en rouge) et du courant tunnel (en bleu) mesurés expérimentalement sur une jonction obtenue par électro-migration.

Pour mesurer expérimentalement le courant tunnel ainsi que le conductance différentielle, il a fallu développer un système de caractérisation électrique spécifique. La mesure expérimentale de la conductance différentielle est réalisée grâce à une technique de modulation empruntée au domaine des micro-ondes. Pour cela il est requis d'utiliser une détection synchrone ainsi qu'un générateur de fonction. Un schéma du

Le système de mesure est présenté sur la figure 8.8. Le but de la méthode est de créer une modulation dV sur une tension continue. Comme le montre la figure 8.8, deux signaux $V_1 = V_{DC}$ et $V_2 = V_{AC} \cos(2\pi ft)$ sont créés et sont ajoutés électroniquement par un amplificateur sommateur pour donner une tension $V_S = V_1 + V_2$. Cette tension modulée est ensuite appliquée à une jonction obtenue par électro-migration. Le courant tunnel mesuré est converti en une tension par le biais d'un convertisseur courant tension avec une amplification de 10^8 V/nA. Cette nouvelle tension est envoyée à la fois sur l'entrée d'une détection synchrone et sur une carte d'acquisition. La démodulation est effectuée à la même fréquence f que la tension V_2 . Le signal de sortie de la détection synchrone est dirigé sur une carte d'acquisition. La modulation appliquée pour mesurer la conductance est un signal sinusoïdal de fréquence $f=1$ kHz avec une amplitude de 10 mVrms. La tension continue est balayée sur un intervalle $V_1 = [-1, 1]$ V. Le résultat expérimental de la mesure de la conductance différentielle (en rouge) ainsi que du courant tunnel (en bleu) pour une jonction électro-migrée est présentée sur la figure 8.9. La valeur à $V=0$ V est bien dans le cas de la conductance différentielle différent de 0 V et comme nous l'avons montré précédemment, avec la faible tension de modulation appliquée sur la jonction celle-ci est bien dans le régime tunnel. Il est alors possible de déterminer la valeur de la distance d entre les deux électrodes grâce à l'équation (8.11). Sur l'ensemble des jonctions que nous avons mesurées, nous avons obtenu une valeur moyenne $\tilde{d}=1.2 \pm 0.2$ nm. La distance inter-atomique de l'or étant de l'ordre de 2.5 Å[64], les jonctions obtenues sont 5 fois plus grandes que cette distance.

Chapitre 9

Caractérisation optique des jonctions électro-migrées par génération de second harmonique

Les nano-antennes optiques sont utilisées comme capteur à cause de leur capacité à confiner et exalter localement un champ électromagnétique. Dans le cas de particules métalliques couplées, le confinement et l'exaltation du champ électromagnétique se produisent dans la zone de couplage [65, 66, 67]. De plus, cette exaltation est fortement dépendante de la distance d'interaction entre les particules [68, 69]. Ces structures métalliques peuvent aussi favoriser la génération d'harmoniques optiques [70, 71, 72, 73]. Dans le cas de l'or, ce sont les interfaces ainsi que la forme de la structure qui sont responsables de la génération de second harmonique. Les jonctions tunnels obtenues par électro-migration ont des distances généralement proches du nanomètre et se trouvent donc être capables d'exalter fortement un champ électromagnétique [68]. L'effet d'exaltation en fonction de la distance de couplage dans le cadre d'excitation linéaire a déjà été démontré [74, 75, 76]. La génération de seconde harmonique paraît être adaptée aux jonctions électro-migrées. Dans ce chapitre sont présentés le phénomène de SHG ainsi que le système permettant sa caractérisation. Les résultats obtenus en appliquant ce type de caractérisation à des jonctions tunnels électro-migrées y sont aussi présentés.

9.1 Génération de second harmonique

La génération de second harmonique (SHG pour Second harmonic generation) est un processus d'optique non linéaire du second ordre. Lorsque des photons de fréquence ω interagissent avec un matériau non-linéaire (semi-conducteur, métaux), ceux-ci sont convertis en photons de fréquence 2ω . Ce principe de conversion a été montré pour la première fois par Franken P.A. et ses collègues en 1961 [77]. Ils ont démontré qu'en focalisant une excitation laser à $\lambda=694$ nm sur un échantillon de quartz, celui-ci émettait en réponse une lumière à $\lambda=347$ nm. Les premières excitations de seconde harmonique ont été découvertes sur des matériaux semi-conducteurs. Il faudra attendre quelques années pour voir que les métaux possèdent aussi des propriétés d'optique non-linéaire [78]. L'excitation de ce phénomène non

linéaire requiert l'utilisation d'un faisceau pompe de forte intensité ainsi qu'un accord de phase de celui-ci tout au long du trajet lumineux. Toutefois cette conversion est impossible dans le cas d'un matériau volumique possédant une structure cristalline centro-symétrique, ce qui est notamment le cas dans les métaux (structure cristalline cubique face centrée). Néanmoins, à l'interface entre un métal et un milieu extérieur, cet effet de symétrie est brisé et donc la création de photons harmoniques est alors possible [79]. De plus, dans le cas de particules métalliques, cette génération de seconde harmonique peut être amplifiée par la présence d'effets de retard (termes quadrupolaires, octopolaires, etc.) [80, 81]. La SHG dans le cas de structures métallique nanométriques est un phénomène de surface.

Lorsqu'une structure métallique est excitée par un faisceau laser intense, la polarisation induite n'est plus simplement dépendante de façon linéaire au champ électrique. Il est nécessaire de prendre en compte les termes d'ordre supérieurs, et s'écrit donc de la forme :

$$\vec{P}(t) = P^{(1)}(t) + P^{(2)}(t) + P^{(3)}(t) + \dots, \quad (9.1)$$

où les $P^{(i)}(t)$ sont les polarisations d'ordre i . Par exemple à l'ordre 1 la polarisation de surface s'écrit :

$$P^{(1)}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) E(\omega) e^{-i\omega t} d\omega, \quad (9.2)$$

avec ϵ_0 la constante diélectrique du vide et $\chi^{(i)}$ la susceptibilité électrique d'ordre i . L'ordre 1 correspond à l'optique linéaire car la polarisation est linéairement dépendante à l'amplitude du champ incident (cf. partie I). La polarisation dans le cas de l'ordre 2 s'écrit :

$$\begin{aligned} P^{(2)}(t) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) E(\omega_1) E(\omega_2) e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} d\omega_1 d\omega_2 \\ &= \int_{-\infty}^{+\infty} P^{(2)}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \end{aligned} \quad (9.3)$$

avec $P^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2) = \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) E(\omega_1) E(\omega_2)$. Pour la génération de second harmonique $\omega_1 = \omega_2 = \omega$. En particulier, pour un champ monochromatique à ω_0 , la polarisabilité d'ordre 2 s'écrit :

$$P^{(2)}(\omega = 2\omega_0) = \chi^{(2)}(\omega_0, \omega_0) E^2(\omega_0). \quad (9.4)$$

Dans ce cas précis, l'intensité du signal SHG est donc dépendante au carré de l'intensité du champ électrique incident.

9.2 Système de caractérisation

Pour réaliser la caractérisation des jonctions électro-migrées grâce à la génération de second harmonique, il a été nécessaire de développer un système de caractérisation confocale, dont le fonctionnement est représenté schématiquement sur la figure 9.1. L'excitation est réalisée à l'aide d'une source laser pulsée. Nous utilisons le modèle

”Chameleon Ultra I” de la marque *Cohérent*. Celui-ci émet un faisceau laser accordable de 690 nm à 1050 nm avec une largeur d’impulsion de 140 fs et un taux de répétition de 80 MHz. Ce faisceau laser est ensuite mis en forme afin d’obtenir un faisceau collimaté d’un diamètre comparable à la pupille d’entrée de l’objectif utilisé. La polarisation est contrôlée à l’aide d’un couple polariseur et lame demi-onde (ou quart d’onde). Le faisceau est focalisé sur l’échantillon à l’aide d’un objectif à immersion d’huile possédant une grande ouverture numérique (O.N.=1.49). Il s’agit d’un objectif x100 apochromatique TIRF (Total internal reflection fluorescence) de la marque *Nikon*. La lumière réfléchie et émise par l’échantillon est ensuite collectée par le même objectif. Un filtre dichroïque passe bas est inséré dans le trajet lumineux. Celui-ci ne laisse passer que les longueurs d’ondes telles que $\lambda < 800$ nm. Un second filtre est inséré avant la lentille tube du microscope. Il s’agit d’un filtre passe bande centré à $405 \text{ nm} \pm 5 \text{ nm}$ et permet de ne récupérer que le signal SHG. Le signal est finalement focalisé sur le capteur d’une photodiode avalanche. L’efficacité quantique de notre détecteur pour une longueur d’onde de 400 nm est de l’ordre de 25%. Les images ainsi que le déplacement de l’échantillon sont assurés par un contrôleur électronique de la marque *RHK* et une platine (x, y) piézo électrique.

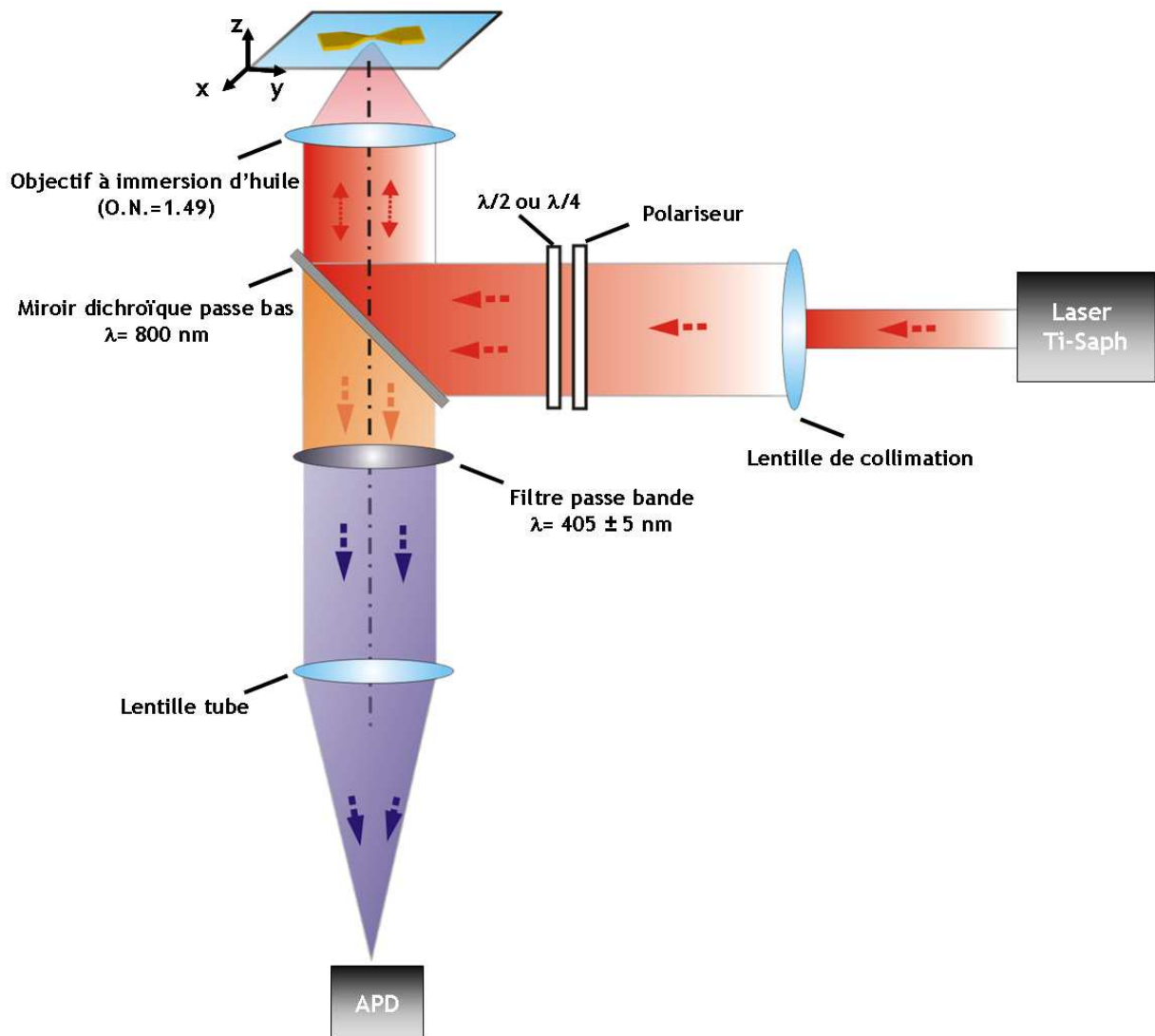


FIGURE 9.1 – Représentation schématique du microscope utilisé pour les caractérisations de seconde harmonique.

Sur la figure 9.2 est représentée l'intensité de signal SHG émis par une couche d'or de 50 nm d'épaisseur en fonction de la puissance moyenne incidente. Pour faciliter la représentation, nous avons utilisé une échelle logarithmique pour les deux axes. En rouge est représentée une régression linéaire. La pente de la droite obtenue est de 2.1 ce qui montre bien que la dépendance du signal SHG est quadratique par rapport au champ incident. En insert sur le graphique est représenté un spectre du signal mesuré. Ce dernier nous confirme que le signal détecté se trouve à la position $\lambda_{SHG} = \lambda_{exc}/2 = 405$ nm.

9.3 Caractérisation non linéaire des jonctions.

La position où se forme la jonction par électro-migration est aléatoire. En effet, la méthode la plus simple pour prédire la position d'une jonction reste encore de réduire

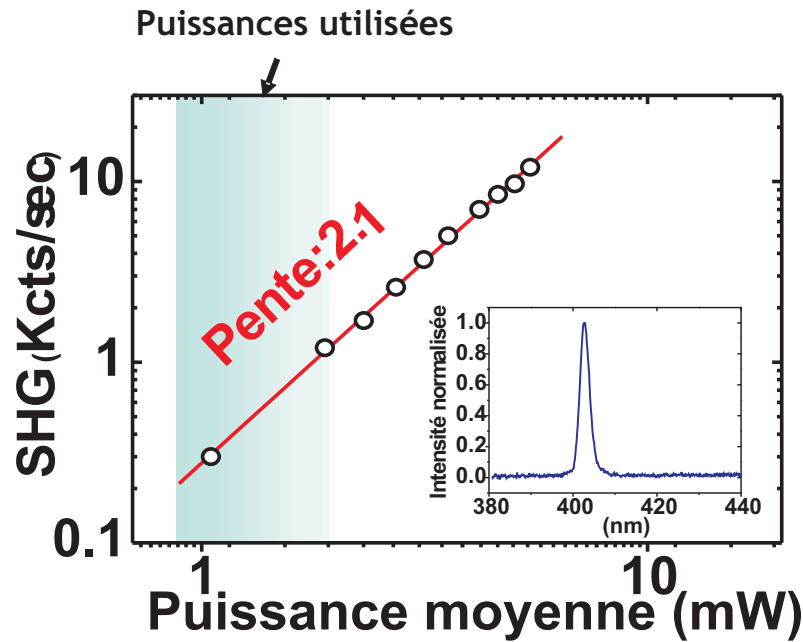


FIGURE 9.2 – Graphique en échelle logarithmique de la puissance de signal SHG sur de l'or en fonction de la puissance moyenne incidente. Une régression linéaire sur les points expérimentaux est représentée en rouge. En insert est représenté le spectre du signal SHG mesuré.

la zone d'interaction. Comme nous souhaitons utiliser ces jonctions comme sources à plasmons, il est important de connaître leurs positions. Dans le cas de particules couplées, il a été montré qu'avec une excitation linéaire deux objets métalliques de tailles nanométriques peuvent exalter le champ incident et que celui-ci est dépendant de la distance de couplage [67]. Récemment cette exaltation a été montrée dans le cas de jonctions électro-migrées [68]. Dans le cas d'une excitation linéaire, la polarisation induite dépend linéairement du champ électrique. Ce n'est plus le cas pour une excitation non-linéaire d'ordre 2. La polarisation induite est maintenant dépendante au carré du champ électrique. De ce fait, de faibles variations sur la distance de couplage doivent se traduire par d'importantes variations sur l'exaltation du champ dans le cas de jonctions électro-migrées. L'exaltation de champ par une antenne couplée dans le cas d'une excitation non-linéaire a déjà été démontrée [75, 82]. De plus, celle-ci est tellement importante qu'elle a servi à réaliser une émission laser dans l'ultraviolet [83].

Sur la figure 9.3 sont représentées deux cartographies du signal de second harmonique d'un nano-fil fabriqué par lithographie à faisceau d'électron. Pour les caractérisations, il a été choisi de polariser circulairement l'excitation (utilisation d'une lame quart d'onde) et une puissance focalisée de $310 \text{ MW} \cdot \text{m}^{-2}$. Les bords de la structure sont représentés à l'aide de pointillés blancs. Lorsque le fil n'a pas encore été électro-migré (cf. figure 9.3 (a)), il y a un contraste différent de la SHG entre la partie réalisée avec la lithographie UV et celle réalisée avec une lithographie par faisceau d'électron (cf. figure 8.2). Dans l'image présentée, les bords des structures UV présentent une exaltation plus importante que les bords des structures par lithographie électronique. Cet effet est lié à la méthode de fabrication. Dans le cas de

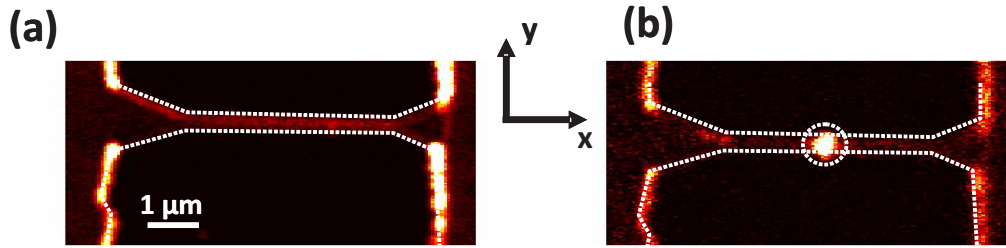


FIGURE 9.3 – Image seconde harmonique d’un nano-fil lithographié en (a) avant électro-migration, (b) après électro-migration. Les bords de la structure sont représentés par les lignes en pointillés blancs.

l’UV, nous n’avons pas cherché à maximiser la résolution sur les bords. De ce fait ceux-ci sont extrêmement rugueux et irréguliers, alors que dans le cas du nano-fil les bords de la structure ont été optimisés pour être le moins rugueux possible. De ce fait, celui-ci présente une intensité de second harmonique de 0.3 kcps/s constante et homogène sur toute sa longueur (cf. figure 9.3 (a)). Après le processus d’électro-migration, une forte intensité SHG ($I=7.3$ kcps/s) localisée sur le fil apparaît (cf. figure 9.3 (b)). Cette intensité est 29 fois plus importante que celle du fil. Seule la jonction peut être responsable d’une telle exaltation.

Cependant quelle est l’influence du faisceau laser sur la structure ? Il a été montré que des structures métalliques pouvaient changer de forme sous l’irradiation d’un laser pulsé [70, 84, 85]. Ces auteurs ont observé des changements géométriques des structures métalliques induits par des fortes puissances laser. Dans ces cas là, ils ont utilisé des puissance focalisées de l’ordres de quelques GW.m^{-2} . Si les passages du laser influent sur la structure métallique, cela doit être visible dans les caractérisations $I(V)$ pendant le processus d’électro-migration. De plus, ceci doit créer des zones d’exaltation de SHG sur le fil par ablation laser qui produirait un ou plusieurs sites favorisant l’électro-migration [86, 87]. Pour vérifier cette influence du faisceau laser nous avons réalisé différentes rampes partielles de tensions suivies d’une cartographie SHG pendant un processus d’électro-migration. L’ensemble des résultats est présenté sur la figure 9.4. Tout au long de l’expérience la puissance laser est fixée à la même valeur ($P_{laser}=311 \text{ MW.m}^{-2}$) et la polarisation est choisie circulaire. La superposition des caractéristiques $I(V)$ montre clairement que la résistance du fil ne change pas tant que le régime d’électro-migration n’est pas atteint. Dans le cas de ce fil, la zone d’électro-migration se situe aux alentours de 1 V. De plus, les cartographies SHG ne montrent aucun changement notable sur la structure du fil. L’exaltation du signal SHG n’apparaît qu’une fois que le fil est électro-migré. Ce résultat permet de considérer que la puissance laser ne produit pas de changement dans la structure du fil. De plus le spot d’exaltation n’est présent qu’à partir du moment où la jonction a été créé. Cette technique de caractérisation optique est donc tout à fait adaptée à la caractérisation non destructive des jonctions nanométriques.

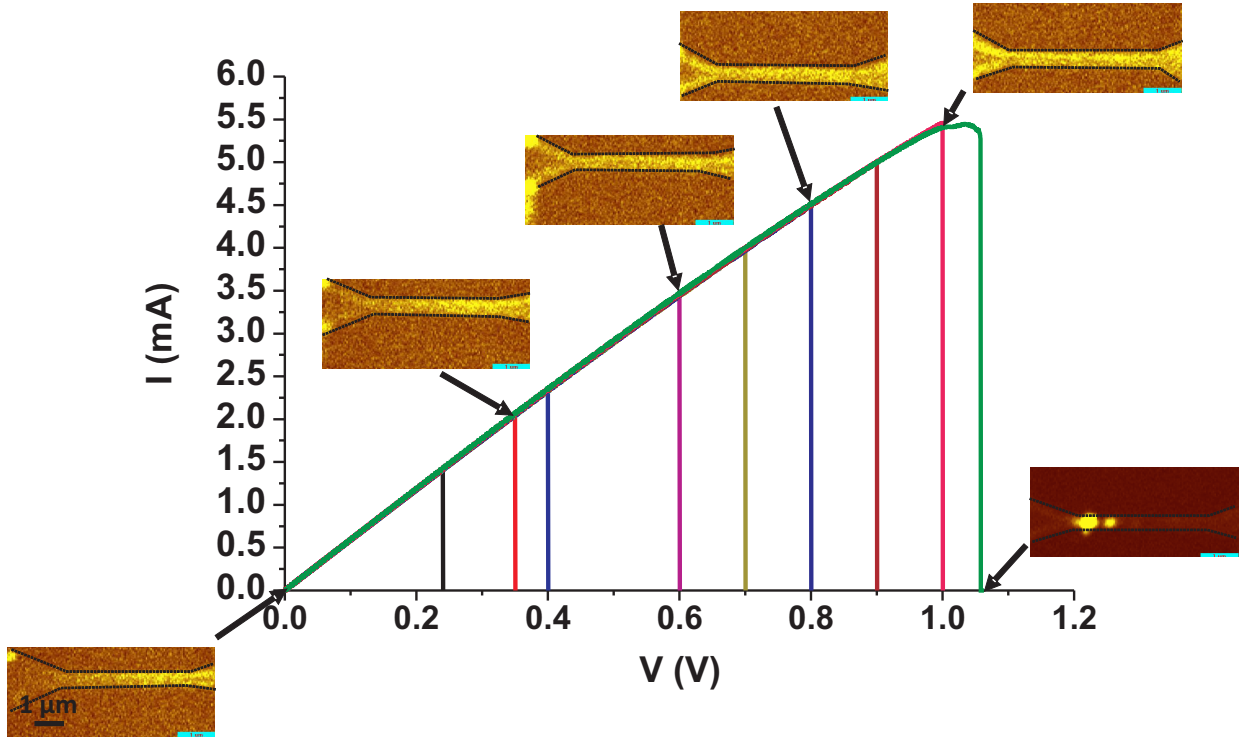


FIGURE 9.4 – Représentation $I(V)$ pour un nano-fil lithographié pour plusieurs rampes de tensions effectuées. Une cartographie seconde harmonique est réalisée après chaque rampe de tension.

9.4 Exaltation SHG vs distance inter-électrode

Nous avons voulu vérifier s'il existait une corrélation entre la taille des jonctions et l'exaltation de la SHG. Pour mesurer un facteur d'exaltation, il nous est nécessaire d'avoir une valeur d'intensité SHG de référence. Cette référence consiste en des bords rectangulaires isolés. Sur la figure 9.5 est présentée une image MEB montrant le type de structure ainsi que la cartographie de second harmonique correspondante. Les bords rectangulaires sont les extrémités de deux fils de 100 nm de large (même largeur que le nano-fil utilisé pour créer la jonction). Ceux-ci sont espacés de $2 \mu\text{m}$ permettant de les considérer comme isolés. L'utilisation de deux fils, nous permet de calculer une moyenne sur l'exaltation de second harmonique. Cette moyenne est définie telle que :

$$\langle I_{bord} \rangle = \frac{I_{bord}^d + I_{bord}^g}{2}, \quad (9.5)$$

avec les exposants d et g correspondant à droite et à gauche. Le facteur d'exaltation dans notre cas est défini par :

$$G = \frac{I_J}{\langle I_{bord} \rangle}, \quad (9.6)$$

avec I_J l'intensité de second harmonique au niveau de la jonction. Les intensités (bords et jonction) sont obtenues en intégrant la valeur de chaque pixel sur une zone de $880 \text{ nm} \times 440 \text{ nm}$. Sur la figure 9.5 (b) est représentée une caractérisation de la structure représentée sur la figure 9.5 (a). La cartographie SHG a été réalisée avec une

polarisation incidente circulaire. La position de la jonction est repérée par un cercle en pointillés blancs. D'une façon surprenante, le spot correspondant à l'exaltation par la jonction est beaucoup plus intense que celles des bords de référence. Ceux-ci ont donc une réponse SHG plus faible que la jonction. D'après la définition du facteur d'exaltation, lorsque $G > 1$ cela signifie que l'intensité de la jonction est plus importante que celles sur les bords. A l'inverse lorsque $G < 1$ ce sont les bords qui sont plus intenses.

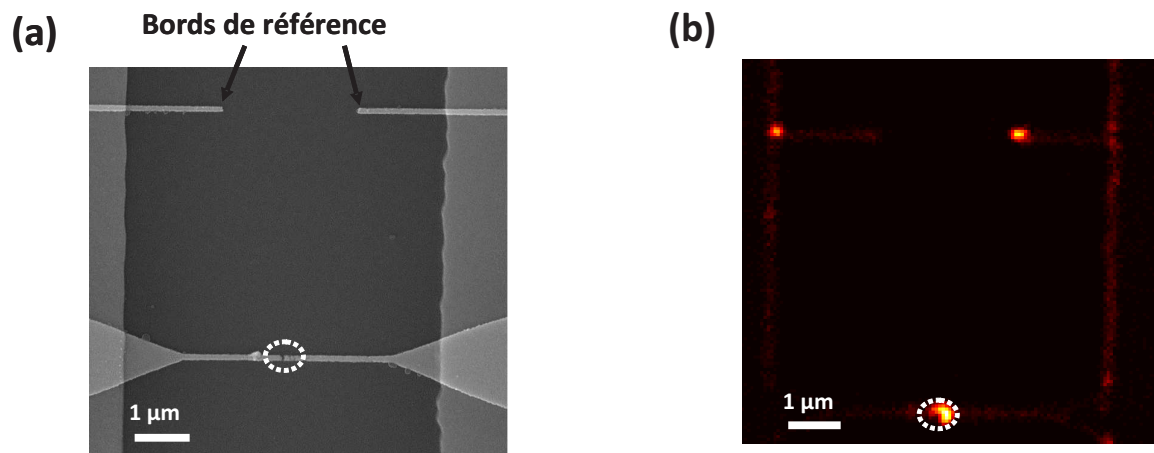


FIGURE 9.5 – (a) Image MEB de la structure étudiée pour l'exaltation de signal SHG. La structure de référence est constituée de deux fils face-à-face, éloignés d'une distance de $2 \mu\text{m}$. Le nano-fil a déjà été électro-migré. La jonction est repérée avec le cercle en pointillé blanc. (b) Cartographie du signal de SHG pour l'image présentée en (a). La polarisation est choisie circulaire.

Sur la figure 9.6 sont représentées des valeurs de l'exaltation SHG pour différentes jonctions électro-migrées. La distance inter-électrode d a été obtenue grâce aux mesures électroniques et la méthode présentée précédemment (cf. équation (8.11)). Les valeurs du facteur d'exaltation forment un nuage de points autour d'une valeur moyenne de $G=10$. Cela signifie qu'en moyenne une jonction tunnel exalte près de 10 fois plus le signal de second harmonique qu'un bord rectangulaire. D'après le graphique et la position des points, il semblerait que l'exaltation soit très peu dépendante de la distance inter-électrode dans ce régime de distance.

Pour le moment, nous avons effectué notre étude en utilisant une polarisation circulaire. Il serait intéressant de déterminer la dépendance en polarisation de cette exaltation. Dans le cas d'antennes optiques dans le régime linéaire, l'exaltation du champ électromagnétique est dépendante de la polarisation [75, 88]. Dans notre configuration expérimentale, la polarisation à 90° est considérée comme alignée avec l'axe du fil, alors que la polarisation à 0° est considérée comme perpendiculaire. Cette fois, pour contrôler la polarisation, la lame quart d'onde est remplacée par une lame demie onde. Comme le montre la figure 9.7, le comportement du facteur d'exaltation en fonction de la polarisation incidente est le même pour deux jonctions électro-migrées différentes. Celles-ci présentent de façon surprenante, lorsque la polarisation est perpendiculaire (0°) à l'axe du fil une plus forte exaltation SHG que pour une polarisation alignée (90°) (cf. image sur la figure 9.7). Dans notre

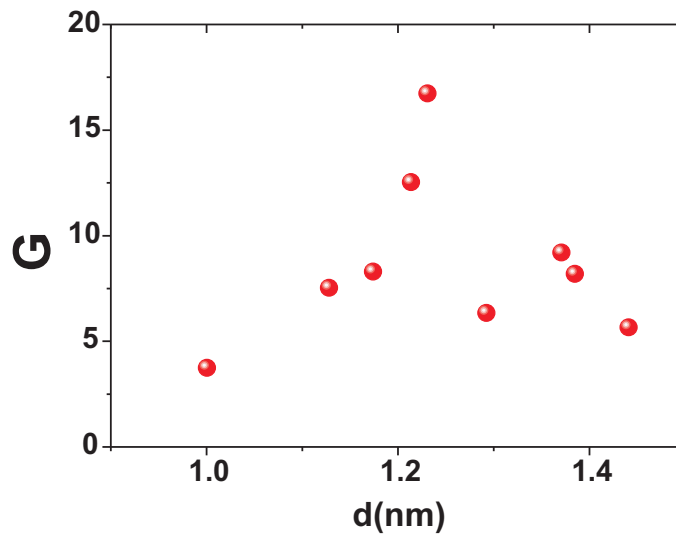


FIGURE 9.6 – Graphique représentant la dépendance du facteur d'exaltation G en fonction de la distance de la jonction créée par électro-migration.

cas, la valeur minimum se situe aux alentours de $G=2.5$ (valeur moyenne des deux minimums). Ceci signifie que quelque soit la polarisation, la jonction tunnel aura toujours une forte exaltation de signal de second harmonique. Le fait que l'exaltation existe toujours malgré le changement de polarisation peut être expliqué par la forme de la jonction. Celle-ci a plutôt une forme arbitraire (cf. image 8.4). Comme l'électro-migration agit sur la structure cristalline de l'objet métallique, les jonctions fabriquées sont donc de forme arbitraires.

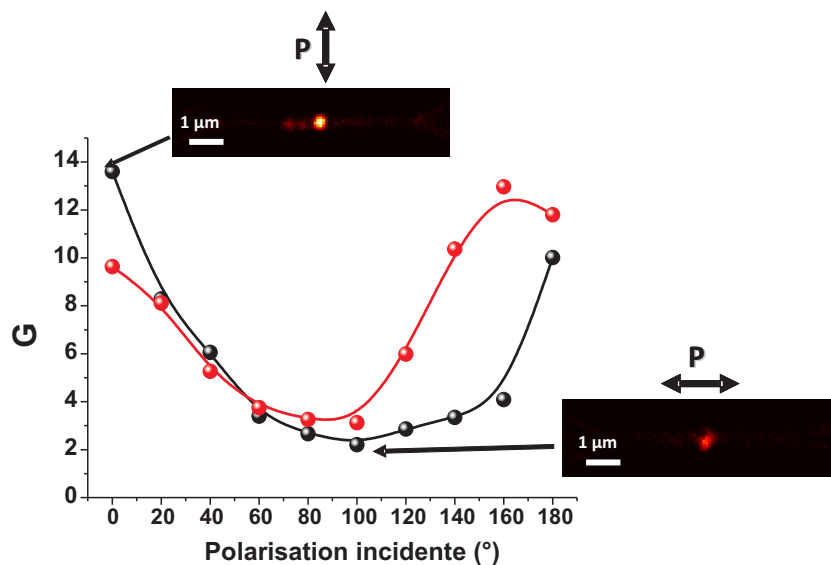


FIGURE 9.7 – Représentation graphique du facteur d'exaltation SHG en fonction de la polarisation incidente pour deux jonctions électro-migrées. Deux cartographies SHG d'un des deux nano-fils électro-migrés pour la polarisation perpendiculaire et parallèle ont été insérées et sont saturées à la même valeur.

Dans le but d'étudier plus précisément le dépendance du gap, une nouvelle étude a été réalisée sur des nano-fils fabriqués par lithographie. La distance d'interaction entre les deux fils est variée du contact jusqu'à une distance de 136 nm. Avec la résolution du microscope, la plus petite distance d obtenue est de 15 nm. Comme ces nano-fils possèdent des extrémités rectangulaires libres, il est donc possible de calculer avec la même méthode que précédemment un facteur d'exaltation SHG. Un exemple de la structure est représenté sur la figure 9.8. Il s'agit de deux nano-fils en or dont les caractéristiques sont 100 nm de large et $2.5 \mu\text{m}$ de long. Contrairement à une jonction électro-migrée, la jonction lithographiée est bien dessinée (cf. figure 8.4). Il s'agit de deux bords rectilignes se faisant face. L'aspect du fil montre que les bords de celui-ci sont aussi bien définis. La première étude réalisée sur ces structures a consisté à regarder l'influence de la polarisation incidente sur un nano-fil avec une distance $d=36$ nm. Comme le montre la figure 9.9, le comportement du nano-fil en fonction de la polarisation est le même que celui obtenu pour les jonctions. Toutefois, dans ce cas de figure, le facteur d'exaltation maximum ($G=1.4$) est plus faible que dans le cas des jonctions tunnels ($G=10$). L'intensité SHG, que ce soit celle d'une jonction lithographiée ou électro-migrée, est toujours maximum pour une polarisation perpendiculaire à l'axe du fil et minimum pour une polarisation parallèle. Ce comportement a déjà été observé pour des antennes couplées [88]. Malheureusement aucune explication n'a encore été donnée concernant ce phénomène. Il est tout de même intéressant de noter que cet effet n'est pas visible dans le cas d'une imagerie de luminescence à deux photons [89] ou d'un mélange à quatre ondes [82]. Dans ces cas là, le minimum est donné pour une orientation perpendiculaire à l'axe de la structure.

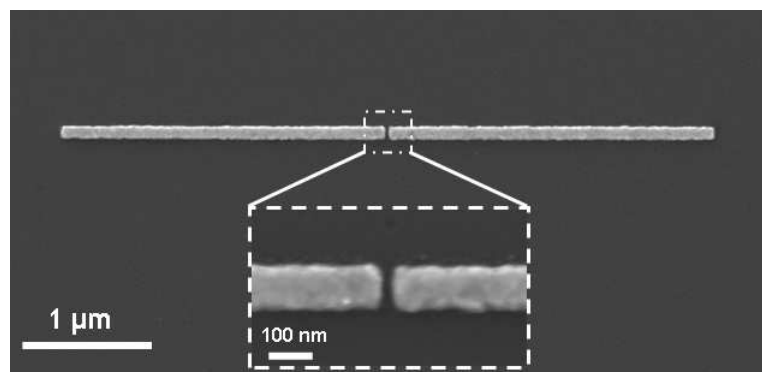


FIGURE 9.8 – Image MEB d'un exemple de structure obtenue par lithographie e-beam.

Deux images SHG correspondant à une polarisation perpendiculaire et à une polarisation parallèle à l'axe de la structure ont été ajoutées sur le graphique 9.9. Lorsque la polarisation est suivant l'axe 0° , l'intensité SHG détectée est homogène sur toute la structure. Dans le cas d'une polarisation alignée suivant l'axe 90° , une intensité sur les coins de la structure ainsi qu'une différence d'intensité au centre au niveau de la zone de couplage sont maintenant visibles. Comme le montre le graphique 9.9, l'intensité sur les coins est plus intense que celle au niveau du gap, d'où l'obtention d'un facteur d'exaltation inférieur à 1.

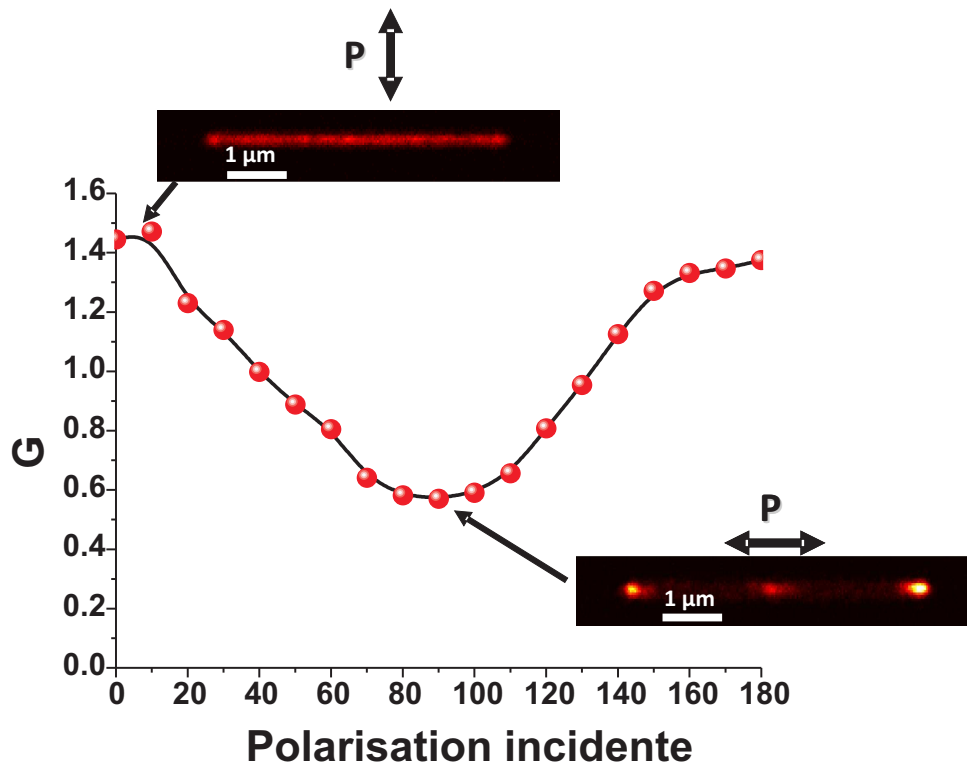


FIGURE 9.9 – Evolution du facteur d'exaltation de SHG en fonction de la polarisation incidente pour un gap lithographié. Deux cartographies de second harmonique sont représentées pour la polarisation parallèle et perpendiculaire.

Nous avons par la suite voulu étudier l'évolution de ce facteur d'exaltation SHG en fonction de la distance d'interaction d pour une polarisation suivant l'axe 0° et une polarisation suivant l'axe 90° . Ces résultats sont reportés sur la figure 9.10. Globalement, pour la polarisation perpendiculaire les valeurs oscillent autour de $G=1$. L'origine de cette variation est sûrement liée à des petites différences inhérentes à la méthode de fabrication employée. Par contre pour la polarisation parallèle ce n'est plus le même comportement. Le facteur d'exaltation semble dépendre de la distance inter-particule d . Pour des valeurs de $d < 80$ nm l'exaltation est toujours inférieure à 1. Cela signifie donc que les bords sont plus intenses que la jonction. Cependant, G croit lorsque la distance de couplage d augmente. Pour des valeurs de $d > 80$ nm, la jonction est maintenant plus intense que les bords. En regardant les images SHG des jonctions correspondantes à cette zone, il est possible de discerner la formation de deux spots correspondants aux deux extrémités en interactions. En

extrapolant ce raisonnement, la valeur maximum atteignable par le facteur d'exaltation est $G=2$. Dans notre cas, nous n'atteignons pas cette limite. Néanmoins, la dépendance de l'exaltation n'est visible que pour des jonctions lithographiées, lié à un effet de symétrie de forme. Il est donc nécessaire pour avoir la plus forte exaltation d'utiliser des jonctions électro-migrées plutôt que des jonctions fabriquées par lithographie. La dépendance en gap semble être moins importante que la structure de la jonction pour définir le niveau de signal SHG généré.

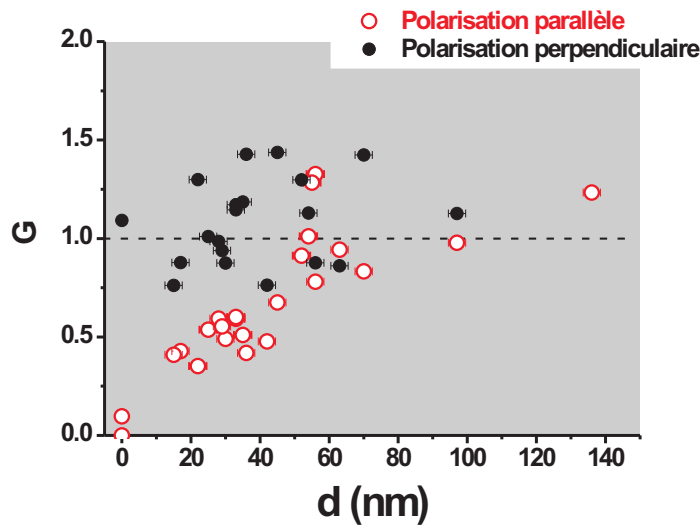


FIGURE 9.10 – Représentation du facteur d'exaltation en fonction de la distance de couplage pour des fils lithographiés pour deux polarisations. En rouge est représentée l'évolution pour une polarisation parallèle à l'axe des fils et en noir pour une polarisation perpendiculaire.

Le fait que l'intensité SHG de la zone de gap soit inférieure à un bord libre pour des zones de fort couplage peut être vu comme une interférence destructive de l'intensité SHG de chaque bord couplé. Le fait d'augmenter la distance de couplage conduit donc à réduire cette interférence, de ce fait le système tend à se comporter comme deux antennes isolés [69]. Le phénomène responsable de cette interférence destructive doit être lié à la polarisation induite sur chaque antenne. Dans le cas d'une excitation linéaire, la polarisation induite est linéairement dépendante au champ électrique et donc change de signe avec E . Ceci n'est plus vrai dans le cas d'une polarisation d'ordre deux. Celle-ci est maintenant dépendante au carré du champ électrique. Cette dépendance implique que la polarisation est invariante au signe du champ électrique.

Afin de valider ce comportement observé expérimentalement, des calculs numériques sont en cours de réalisation. Cependant, le résultat n'est hélas pas encore connu au moment de la rédaction de ce manuscrit.

Chapitre 10

Réalisation d'un transducteur électro-plasmonique : résultats préliminaires

Dans les chapitres précédents, nous avons montré qu'il était possible de déterminer à la fois la taille d'une jonction électro-migrée mais aussi sa position grâce à sa réponse non-linéaire. Ces jonctions présentent une réponse SHG plus importante que dans le cas de structures couplées obtenues par lithographie. Celles-ci peuvent donc être assimilées à des antennes optiques en interaction [68]. En plus d'être un moyen efficace pour structurer le champ électromagnétique à l'échelle nanométrique, les antennes optiques, peuvent sous certaines conditions, réaliser une transduction de photons en électrons et vice versa. Récemment, la transduction de photons en électrons a été mise en évidence par D. Ward et ses collègues dans le cas d'une jonction électro-migrée sous une excitation avec un laser continu [42]. Dans ce chapitre, nous présentons les résultats préliminaires obtenus sur la réalisation d'un transducteur électro-plasmonique complet.

10.1 Conversion électron/photon via l'émission d'un plasmon de surface

La création de lumière à partir d'une jonction tunnel remonte aux travaux de Lambe et McCarthy [90]. Ils observèrent l'apparition d'une émission lumineuse lorsqu'une tension était appliquée à une jonction métal-isolant-métal (MIM). Seulement, cette émission lumineuse n'était appréciable que lorsqu'une des deux électrodes était fortement rugueuse. Ils trouvèrent que cette émission lumineuse n'était possible que lorsque $eV > h\nu$. Ils estimèrent l'efficacité de leur nouvelle source lumineuse aux alentours de 10^{-5} à 10^{-6} photons par électrons. En 1988, les travaux de Gimzewski et ses collègues mirent en évidence la création d'une émission lumineuse entre la pointe d'un microscope à effet tunnel (STM) et la surface [91].

Il existe dans le cas d'une jonction métal-isolant-métal, deux processus responsables d'une émission lumineuse : par effet tunnel inélastique et par désexcitation d'électrons chauds. Dans les deux cas, l'émission lumineuse est sous jacente à la

perte radiative d'un plasmon de surface. Le processus d'émission lumineuse par effet tunnel inélastique a été proposé par Lambe et McCarthy suite à leurs expériences sur les jonctions MIMs [90]. Dans ce cas là, la perte d'énergie émet un photon à l'intérieur de la jonction. A ce dernier est associé une onde évanescente qui va pouvoir exciter un plasmon de surface sur l'électrode d'arrivée. Le second processus a été proposé par Kirtley et ses collègues [92]. Dans ce modèle, les électrons traversent la barrière sans perdre d'énergie. Ce n'est qu'une fois arrivé sur l'électrode que ceux-ci perdent leur énergie en excitant un mode plasmon de surface par collision inélastique. Bien que les deux phénomènes conduisent à l'excitation d'un mode plasmon sur l'électrode d'arrivée, les régimes électriques dans lesquels ils évoluent sont différents. Comme il a été récemment montré avec l'utilisation d'un STM, cette lumière peut se propager dans une structure plasmonique [5]. Néanmoins, ce type d'excitation est peu adaptée à une intégration dans un composant. Pour palier à ce problème, une solution consisterait à utiliser des jonctions tunnels planaires. Celles-ci peuvent parfaitement s'intégrer dans une architecture plus complexe et pourrait constituer une source plasmonique localisée.

10.1.1 Génération de lumière tunnel avec des jonctions électro-migrées.

Nous avons donc testé la génération de lumière avec des jonctions fabriquées par électro-migration. Pour détecter cette luminescence, nous avons utilisé un microscope inversé muni d'un objectif à immersion avec une grande ouverture numérique ($O.N.=1.45$). Une caméra CCD a été placée au plan conjugué image du microscope. L'excitation électrique est réalisée par l'analyseur de composant 4200-SCS. Cet appareil permet d'appliquer une tension continue et de simultanément mesurer le courant passant dans la jonction. Afin de compenser la faible efficacité quantique d'une telle conversion, il a été choisi d'appliquer une tension continue de 5 V aux jonctions électro-migrées. Cette valeur nous assure un courant moyen de l'ordre de 100 nA. Avec une telle tension appliquée sur les nano jonctions, le régime de transport sélectionné doit probablement correspondre à un régime d'émission de champ. Sur la figure 10.1 est présentée l'image optique en transmission obtenue après une application d'une tension de 5 V pendant une durée de 3 min sur une jonction fabriquée par électro-migration. Sur cette image, il apparaît la présence d'un spot lumineux localisé sur le nano-fil (cercle pointillé blanc). D'après le régime de champ sélectionné, cette émission lumineuse liée à la jonction ne peut être issue que du second processus, à savoir la désexcitation par électrons chauds. Cette émission lumineuse est à la fois très confinée mais aussi fortement localisée. Celle-ci représente donc une possibilité de source plasmonique localisée.

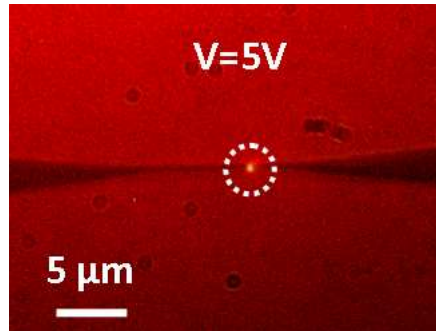


FIGURE 10.1 – Image optique en transmission d’une jonction après électro-migration avec une tension de 5V appliquée durant 3 min.

10.1.2 Stabilité de l’émission lumineuse

Nous avons voulu vérifier si cette émission lumineuse était stable dans le temps. Pour cela, nous avons appliqué de façon successive une tension de 5 V pendant une durée de 3 min à une même jonction. Des coupes au niveau de la zone d’électroluminescence, pour trois utilisations successives d’une même jonction, sont reportées sur le graphique 10.2 (a). Pour la lisibilité, l’intensité a été normalisée en divisant par le maximum des trois mesures. Il apparaît que plus la jonction est utilisée, moins il y a d’intensité lumineuse détectée. Plusieurs explications peuvent être à l’origine de cette diminution d’intensité lumineuse. Nous pensons notamment à une contamination à cause de l’environnement (mesures à l’air libre) ainsi qu’à une réorganisation de la structure cristalline des électrodes à cause des champs appliqués (GV.m^{-1}). Il a déjà été montré qu’il était possible de changer l’orientation cristalline d’une surface d’or en appliquant des champs de l’ordre du GV.m^{-1} avec une pointe d’un STM [93]. S’il s’agit d’une réorganisation atomique des électrodes, celle-ci doit se reporter sur le courant mesuré.

Grâce à l’analyseur de composant 4200-SCS, il a été possible de mesurer le courant tunnel généré par la jonction tunnel pour chaque application de la tension continue. Ces résultats sont reportés sur la figure 10.2 (b). Comme le montre les trois courbes, le courant tunnel n’est pas stable dans le temps. De plus, le courant moyen décroît au fur et à mesure de l’utilisation. Celui-ci passe de 134 nA pour la première utilisation à 50 nA, pour finir à 7 nA. Le fait que le courant ne soit pas constant est cohérent avec une réorganisation de la structure cristalline des électrodes par le champ électrique appliqué. De plus, cette dernière semble conduire à une destruction de la conduction tunnel. Le fait que le courant moyen baisse permet donc d’expliquer la diminution de l’intensité d’électroluminescence détectée (cf. figure 10.2 (a)).

Toutefois, la valeur du courant moyen dans le cas de la seconde utilisation ($\tilde{I}=50$ nA) est deux et demi fois moins important que dans le cas de la première ($\tilde{I}=134$ nA), et pourtant l’intensité lumineuse est sensiblement la même ($\approx 20\%$ d’atténuation). De même l’intensité lumineuse de la troisième utilisation est encore présente ($\approx 70\%$ d’atténuation), alors que le courant mesuré est vingt fois moins important qu’au début. Il semblerait que la conversion d’électron en photon soit liée aux instabilités présentes dans la mesure du courant. Nous avons donc cherché à les quantifier pour

chacune des trois utilisations. Pour cela, nous avons considéré une ligne de base à $I=80$ nA et nous avons compté les maxima supérieurs à cette base. En ce qui concerne la première et seconde utilisation, le nombre d'instabilités est sensiblement le même ($N_1=16$ et $N_2=14$), alors que pour la troisième il n'est que de $N_3=2$. Ce résultat confirme que l'électroluminescence n'est pas dépendante d'un niveau de moyen de courant mais du nombre d'instabilités présentes dans le courant. D'après ce résultat, il est envisageable de baisser la tension appliquée à la jonction. Cette diminution de la tension appliquée permettrait du même coup de limiter l'effet de réorganisation sous fort champ.

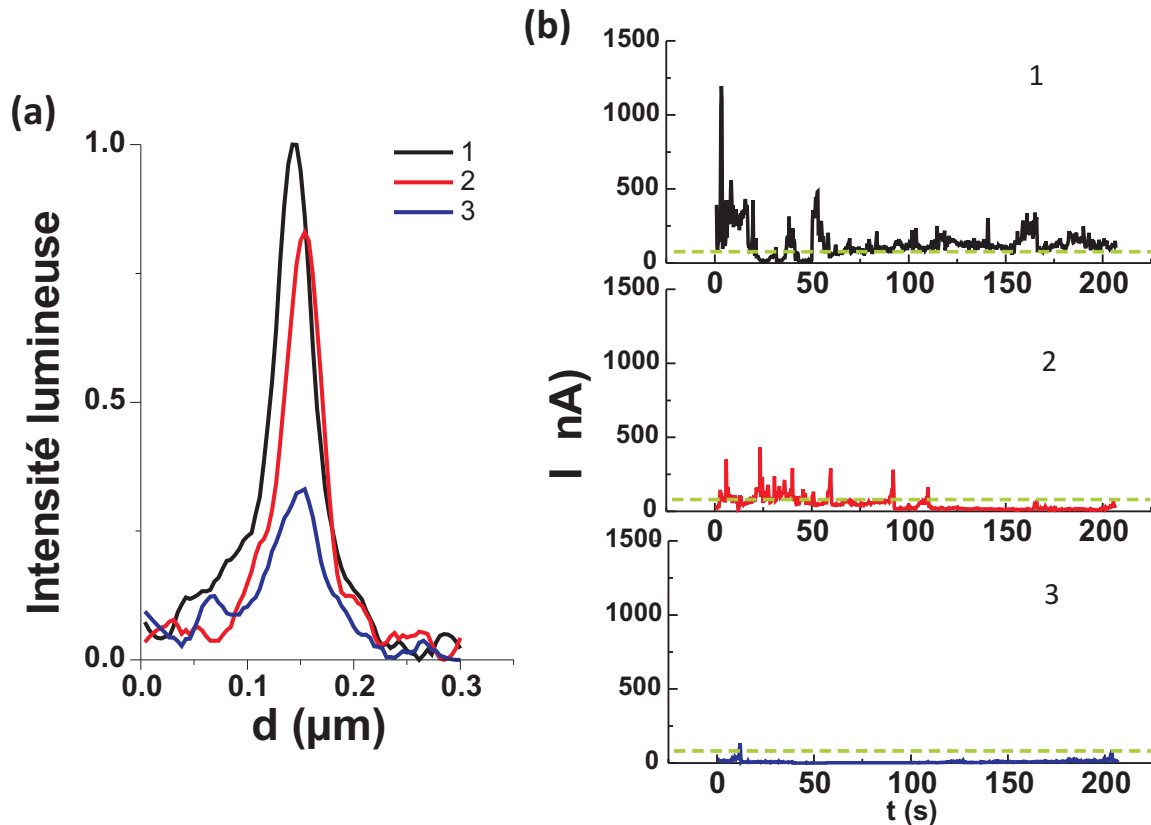


FIGURE 10.2 – (a) Section au niveau de la position au niveau du spot pour 3 applications successive de 5V pendant 3 min. (b) Intensité tunnel de la jonction mesurée pour les 3 applications successives de 5V pendant 3 min.

Cette émission lumineuse est donc le signe que des jonctions fabriquées par électromigration peuvent servir de source électro-plasmonique. Toutefois, leur utilisation dans le cas d'une excitation électrique continue, a montré qu'elles étaient instables dans le temps. Diverses solutions sont envisagées afin de stabiliser ce type de sources électroluminescentes, comme par exemple une excitation avec un champ alternatif ou une structuration de l'électrode afin d'ordonner les propriétés plasmoniques.

10.2 Conversion photons/électrons : via excitation d'un plasmon de surface

Lors de la section précédente, nous avons observé la conversion d'électrons en photons par les jonctions électro-migrées. Bien que le courant tunnel mesuré ne puisse rester stable dans le temps, dut notamment à une forte réorganisation des électrodes par les forts champ appliqué, cette conversion electron-photon par les jonctions tunnel s'avère être une solution en tant que source lumineuse à l'échelle nanométrique.

Afin d'obtenir un transducteur complet, il est nécessaire de procéder à la conversion inverse, c'est-à-dire photons vers électrons. Des travaux récents, utilisant des jonctions tunnels électro-migrées, ont montré une augmentation du courant tunnel par une excitation optique. Ce phénomène de photo-courant est aussi bien possible dans le cas d'une excitation optique linéaire [42, 94], que dans le cas d'une excitation optique non-linéaire [95]. Dans les deux types d'excitations, l'illumination des contacts par le laser induit la création d'un champ oscillant entre les deux électrodes favorisant le passage des électrons. Le courant tunnel est alors modifié et s'écrit à l'aide du formalisme de Tien-Gordon [96] :

$$\begin{aligned}
 I &\approx I(V_{DC}) + \left. \frac{\partial I}{\partial V} \right|_{V_{DC}} V_{opt} \cos(\omega t) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 I}{\partial V^2} \right|_{V_{DC}} V_{opt}^2 \cos^2(\omega t) + \dots \\
 I &\approx I(V_{DC}) + \frac{1}{4} V_{opt}^2 \left. \frac{\partial^2 I}{\partial V^2} \right|_{V_{DC}} + \left. \frac{\partial I}{\partial V} \right|_{V_{DC}} V_{opt} \cos(\omega t) + \dots \\
 &\quad \frac{1}{4} V_{opt}^2 \left. \frac{\partial^2 I}{\partial V^2} \right|_{V_{DC}} \cos(2\omega t).
 \end{aligned} \tag{10.1}$$

Ce photo courant est lié à la grandeur $\left. \frac{\partial^2 I}{\partial V^2} \right|_{V_{DC}}$. La linéarisation du $\cos^2(\omega t)$ fait apparaître deux termes fonctions de $\left. \frac{\partial^2 I}{\partial V^2} \right|_{V_{DC}}$. Le premier est appelé la rectification optique alors que le second est la réponse harmonique du système à la fréquence 2ω . Nous avons vérifié expérimentalement que les jonctions tunnels fabriquées permettaient bien cette augmentation du courant tunnel par rectification optique. Pour cela, nous avons utilisé le même laser pulsé que celui employé pour la génération de second harmonique, et focalisé celui-ci sur la jonction. Nous avons ensuite enregistré simultanément la caractéristique courant-tension ainsi que la différentielle de conductance pour différentes puissances laser. Comme le montre les courbes sur la figure 10.3 (a), le courant est bien augmenté en fonction de la puissance laser utilisée. Plus l'intensité lumineuse est grande plus le courant tunnel mesuré devient grand. Lorsque le laser est appliqué sur la jonction avec une puissance différente de 0 W (courbe en rouge), le maximum de courant détecté est de l'ordre de ≈ 200 pA, soit quatre fois plus que dans le cas sans laser (courbe en noir). Lorsque l'intensité laser est doublée (courbe en bleu), le courant détecté est encore augmenté, cependant celui-ci ne l'est pas d'un facteur deux. Au niveau de la différentielle de conductance (cf. figure 10.3 (b)), il se trouve que la valeur à $V=0$ V, permettant de remonter à la distance inter-électrode d , est modifiée lorsque le laser est appliqué

sur la jonction. En effet, la valeur de cette dernière augmente lorsque la puissance laser augmente, se traduisant comme une diminution de la distance inter-électrode. L'excitation optique permet d'abaisser la hauteur de la barrière, favorisant ainsi le passage des électrons. Ce comportement est en accord avec l'observation faite sur l'amplification du courant tunnel.

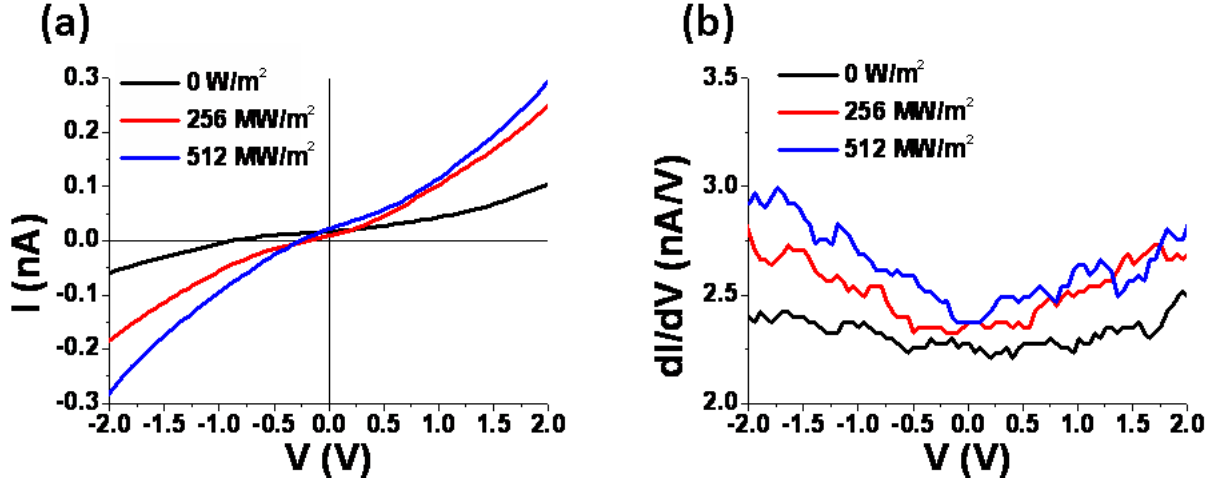


FIGURE 10.3 – (a) Représentation graphique du courant tunnel mesuré pour une jonction fabriquée par électro-migration pour différentes puissances laser. (b) Représentation graphique de la différentielle de conductance de la même jonction pour différentes puissances laser.

Comme le montre l'équation (10.1), le courant possède deux termes supplémentaires créés par l'excitation optique. Comme la réponse harmonique est à la fréquence de 2ω , il doit exister un lien avec la SHG. Pour cela nous avons développé l'expression de la polarisabilité d'ordre 2 donnée par l'équation (9.3) dans le cas d'une excitation monochromatique et dans le cas de la génération de seconde harmonique $\omega_1 = \omega_2 = \omega_0$. En utilisant un champ électrique de la forme :

$$E(t) = \frac{E_0}{2}e^{-i\omega_0 t} + \frac{E_0}{2}e^{+i\omega_0 t}, \quad (10.2)$$

avec E_0 l'amplitude du champ, et en l'insérant dans l'équation 9.3, la polarisabilité $P^{(2)}(t)$ peut s'écrire sous la forme :

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2 (1 + \cos(2\omega_0 t)). \quad (10.3)$$

Il y a donc à la fois une partie rectification optique et harmonique (terme en $\cos(2\omega_0 t)$) directement issues de la polarisabilité non-linéaire. Nous avons expérimentalement réalisé l'acquisition du signal de seconde harmonique ainsi que le courant tunnel passant à travers la jonction. Pour cette expérience, la longueur du nanofil a été réduite de $4 \mu\text{m}$ à 100 nm . Ces résultats sont présentés sur la figure 10.4. Comme montré précédemment dans la section 9.3, le signal de seconde harmonique est exalté par la présence de la jonction tunnel. Sur la figure 10.4 (b) est représentée la cartographie du courant tunnel ($I(x,y)$) avec une tension appliquée à

la jonction de $V=5$ V. Le maximum de courant tunnel est positionné au niveau de la jonction tunnel. Il est donc possible à partir d'une excitation d'optique non linéaire, d'obtenir une information sur la position et l'exaltation de la jonction ainsi qu'une amplification du courant tunnel par rectification optique.

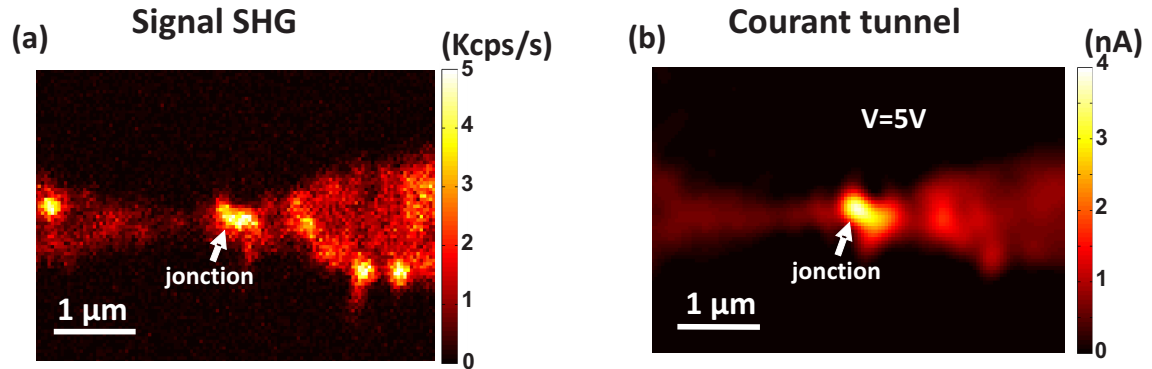


FIGURE 10.4 – (a) Cartographie de second harmonique d'une jonction électro-migrée. (b) Cartographie $I(x,y)$ traversant la jonction durant l'imagerie de second harmonique. La tension appliquée est de $V=5V$.

Toutefois des expériences complémentaires sont nécessaires afin d'éliminer les autres phénomènes tels que l'expansion thermique ou les processus à multi-photons par exemple.

Chapitre 11

Conclusion et perspectives

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés au développement de composants électro-plasmoniques. Dans cette optique, nous avons focalisé notre travail sur deux types de structures. La première est basée sur l'utilisation de nanotube de carbone dans une configuration de transistor à effet de champ. La fabrication de ces composants a nécessité le développement au sein de l'équipe d'une technique de lithographie multi-niveaux par faisceau d'électron. Actuellement la technique de fabrication ainsi que de caractérisation électrique au niveau de ce type de composant est bien maîtrisée. La dernière étape restante étant la démonstration d'électroluminescence. La seconde structure électroluminescente est basée sur l'utilisation de jonctions tunnels planaires. La méthode sélectionnée pour fabriquer ce type de composant est adaptée et a permis d'obtenir de façons reproductibles des jonctions tunnels planaires. La caractérisation électrique de ces dernières a révélé que la fonction de sortie des électrodes était plus faible que celle de l'or massif. Cet effet affecte directement la plage de tension de chaque régime de fonctionnement ainsi que la détermination électrique de la largeur de la barrière. Le régime de transport prédominant avec les jonctions tunnels mesurées est l'émission de champ (le régime tunnel étant très faible ($|V| < 0.5$ V)). Globalement, les jonctions obtenues ont des dimensions de l'ordre du nanomètre avec un courant tunnel dans les centaines de picoampères par volt appliqué. La caractérisation optique, par le biais de la génération de seconde harmonique, nous a permis de mettre en évidence par une forte exaltation du signal SHG liée à la forme des jonctions.

La transduction électro-optique complète dans le cas des jonctions tunnels a été montrée lors de cette partie. Cependant, le régime de transport de ces dernières se trouvant être l'émission de champ, le processus responsable de l'émission lumineuse reste la désexcitation d'électrons chauds. De plus, l'obtention d'un courant tunnel dans la gamme des nA nécessite, dans le cas des jonctions étudiées, d'appliquer des champs importants (GV.m^{-1}). Cette dernière condition provoque une réorganisation de la structure cristalline des électrodes contribuant à une destruction de la conduction tunnel. Dans le cas d'une conversion inverse, il a été montré que l'ajout d'un laser au niveau de la jonction pouvait augmenter significativement le courant tunnel généré par une jonction. Cet effet est notamment caractérisé par un changement de la valeur de la conductance différentielle à tension nulle (réduction de la distance inter-électrode).

Perspectives

Il reste encore beaucoup de points à éclaircir sur les jonctions tunnels. L'étude plus approfondie du phénomène responsable de l'électroluminescence s'avère nécessaire. Réduire la tension, appliquer un champ alternatif ou structurer les électrodes constituent des expériences requises et indispensables pour la compréhension du phénomène. De plus, l'étude des propriétés spectrales, de polarisation et d'efficacité quantique n'ont encore jamais été étudiées sur ce type de source.

Les premières mesures ont révélé que les antennes optiques pourraient être des transducteurs complets. Cependant l'identification du phénomène responsable de l'augmentation du courant tunnel par une excitation optique reste encore à déterminer. Il est nécessaire de procéder à de nouvelles expériences afin d'identifier le processus responsable de cet effet.

Bibliographie

- [1] C. S. Kim, I. Vurgaftman, R. A. Flynn, M. Kim, J. R. Lindle, W. W. Bewley, K. Bussmann, J. R. Meyer, and J. P. Long, “An integrated surface-plasmon source.” *Optics Express* **18**, 10609–15 (2010).
- [2] J.-P. Tetienne, a. Bousseksou, D. Costantini, R. Colombelli, a. Babuty, I. Moldovan-Doyen, Y. De Wilde, C. Sirtori, G. Beaudoin, L. Largeau, O. Mauguin, and I. Sagnes, “Injection of midinfrared surface plasmon polaritons with an integrated device,” *Applied Physics Letters* **97**, 211110 (2010).
- [3] D. Koller, A. Hohenau, H. Ditlbacher, N. Galler, F. Reil, F. Aussenegg, A. Leitner, E. List, and J. Krenn, “Organic plasmon-emitting diode,” *Nature Photonics* **2**, 684–687 (2008).
- [4] R. J. Walters, R. V. A. van Loon, I. Brunets, J. Schmitz, and A. Polman, “A silicon-based electrical source of surface plasmon polaritons.” *Nature Materials* **9**, 21–5 (2010).
- [5] P. Bharadwaj, A. Bouhelier, and L. Novotny, “Electrical excitation of surface plasmons,” *Physical Review Letters* **106**, 226802 (2011).
- [6] T. Wang, E. Boer-Duchemin, Y. Zhang, G. Comtet, and G. Dujardin, “Excitation of propagating surface plasmons with a scanning tunnelling microscope.” *Nanotechnology* **22**, 175201 (2011).
- [7] A. L. Falk, F. H. L. Koppens, C. L. Yu, K. Kang, N. de Leon Snapp, A. V. Akimov, M.-H. Jo, M. D. Lukin, and H. Park, “Near-field electrical detection of optical plasmons and single-plasmon sources,” *Nature Physics* **5**, 475–479 (2009).
- [8] J. K. Hyun and L. J. Lauhon, “Spatially Resolved Plasmonically Enhanced Photocurrent from Au Nanoparticles on a Si Nanowire.” *Nano Letters* pp. 0–3 (2011).
- [9] J. A. Misewich, R. Martel, P. Avouris, J. C. Tsang, S. Heinze, and J. Tersoff, “Electrically induced optical emission from a carbon nanotube FET.” *Science* (New York, N.Y.) **300**, 783–6 (2003).
- [10] M. Freitag, Y. Martin, J. a. Misewich, R. Martel, and P. Avouris, “Photoconductivity of Single Carbon Nanotubes,” *Nano Letters* **3**, 1067–1071 (2003).
- [11] S.-F. Shi, X. Xu, D. C. Ralph, and P. L. McEuen, “Plasmon Resonance in Individual Nanogap Electrodes Studied Using Graphene Nanoconstrictions as Photodetectors,” *Nano Letters* **11**, 1814–1818 (2011).

- [12] P. Neutens, P. V. Dorpe, I. D. Vlamincx, L. Lagae, and G. Borghs, “Electrical detection of confined gap plasmons in metal-insulator-metal waveguides,” *Nature Photonics* **3**, 283–286 (2009).
- [13] M. Freitag, J. Chen, J. Tersoff, J. Tsang, Q. Fu, J. Liu, and P. Avouris, “Mobile Ambipolar Domain in Carbon-Nanotube Infrared Emitters,” *Physical Review Letters* **93**, 13–16 (2004).
- [14] Iijima, “Single-shell carbon nanotubes of 1-nm diameter,” *Nature* **363**, 603 (1993).
- [15] R. H. Baughman, A. A. Zakhidov, and W. A. de Heer, “Carbon nanotubes—the route toward applications.” *Science (New York, N.Y.)* **297**, 787–92 (2002).
- [16] J. Liu, M. Shao, X. Chen, W. Yu, X. Liu, and Y. Qian, “Large-scale synthesis of carbon nanotubes by an ethanol thermal reduction process.” *Journal of the American Chemical Society* **125**, 8088–9 (2003).
- [17] M. H. Rümeli, A. Bachmatiuk, F. Börrnert, F. Schäffel, I. Ibrahim, K. Cendrowski, G. Simha-Martynkova, D. Plachá, E. Borowiak-Palen, G. Cuniberti, and B. Büchner, “Synthesis of carbon nanotubes with and without catalyst particles.” *Nanoscale Research Letters* **6**, 303 (2011).
- [18] K. Balasubramanian and M. Burghard, “Charge transport through carbon nanotubes interacting with light,” *Semiconductor Science and Technology* **21**, S22–S32 (2006).
- [19] H. Harutyunyan, “Excited State Dynamics of Individual Single-Walled Carbon Nanotubes,” *Carbon Nanotubes* (2009).
- [20] M. J. O’Connell, S. M. Bachilo, C. B. Huffman, V. C. Moore, M. S. Strano, E. H. Haroz, K. L. Rialon, P. J. Boul, W. H. Noon, C. Kittrell, J. Ma, R. H. Hauge, R. B. Weisman, and R. E. Smalley, “Band gap fluorescence from individual single-walled carbon nanotubes.” *Science (New York, N.Y.)* **297**, 593–6 (2002).
- [21] S. M. Bachilo, M. S. Strano, C. Kittrell, R. H. Hauge, R. E. Smalley, and R. B. Weisman, “Structure-assigned optical spectra of single-walled carbon nanotubes.” *Science (New York, N.Y.)* **298**, 2361–6 (2002).
- [22] A. Hartschuh, H. N. Pedrosa, L. Novotny, and T. D. Krauss, “Simultaneous fluorescence and Raman scattering from single carbon nanotubes.” *Science (New York, N.Y.)* **301**, 1354–6 (2003).
- [23] J. Lefebvre, J. Fraser, P. Finnie, and Y. Homma, “Photoluminescence from an individual single-walled carbon nanotube,” *Physical Review B* **69**, 1–5 (2004).
- [24] J. Lefebvre, Y. Homma, and P. Finnie, “Bright Band Gap Photoluminescence from Unprocessed Single-Walled Carbon Nanotubes,” *Physical Review Letters* **90**, 1–4 (2003).
- [25] Y.-Z. Ma, J. Stenger, J. Zimmermann, S. M. Bachilo, R. E. Smalley, R. B. Weisman, and G. R. Fleming, “Ultrafast carrier dynamics in single-walled carbon nanotubes probed by femtosecond spectroscopy.” *The Journal of chemical physics* **120**, 3368–73 (2004).
- [26] F. Wang, G. Dukovic, L. Brus, and T. Heinz, “Time-Resolved Fluorescence of Carbon Nanotubes and Its Implication for Radiative Lifetimes,” *Physical Review Letters* **92**, 17–20 (2004).

- [27] K. Iakoubovskii, N. Minami, T. Ueno, S. Kazaoui, and H. Kataura, "Optical Characterization of Double-Wall Carbon Nanotubes : Evidence for Inner Tube Shielding," *Journal of Physical Chemistry C* **112**, 11194–11198 (2008).
- [28] V. Derycke, R. Martel, J. Appenzeller, and P. Avouris, "Carbon Nanotube Inter- and Intramolecular Logic Gates," *Nano Letters* **1**, 453–456 (2001).
- [29] B.-H. Chen, J.-H. Wei, P.-Y. Lo, H.-H. Wang, M.-J. Lai, M.-J. Tsai, T. S. Chao, H.-C. Lin, and T.-Y. Huang, "A carbon nanotube field effect transistor with tunable conduction-type by electrostatic effects," *Solid-State Electronics* **50**, 1341–1348 (2006).
- [30] V. Derycke, R. Martel, J. Appenzeller, and P. Avouris, "Controlling doping and carrier injection in carbon nanotube transistors," *Applied Physics Letters* **80**, 2773 (2002).
- [31] M. Freitag, V. Perebeinos, J. Chen, A. Stein, J. Tsang, J. Misewich, R. Martel, and P. Avouris, "Hot carrier electroluminescence from a single carbon nanotube," *Nano Letters* **4**, 1063–1066 (2004).
- [32] M. Freitag, J. C. Tsang, J. Kirtley, A. Carlsen, J. Chen, A. Troeman, H. Hilgenkamp, and P. Avouris, "Electrically excited, localized infrared emission from single carbon nanotubes." *Nano Letters* **6**, 1425–33 (2006).
- [33] a. Vladar and M. Postek, "Electron Beam-Induced Sample Contamination in the SEM," *Microscopy and Microanalysis* **11**, 764–765 (2005).
- [34] Z. Chen, J. Appenzeller, J. Knoch, Y.-m. Lin, and P. Avouris, "The role of metal-nanotube contact in the performance of carbon nanotube field-effect transistors." *Nano Letters* **5**, 1497–502 (2005).
- [35] Y. He, J. Zhang, S. Hou, Y. Wang, and Z. Yu, "Schottky barrier formation at metal electrodes and semiconducting carbon nanotubes," *Applied Physics Letters* **94**, 093107 (2009).
- [36] S. Tans and A. Verschueren, "Room-temperature transistor based on a single carbon nanotube," *Nature* **393**, 49–52 (1998).
- [37] W. Kim, A. Javey, O. Vermesh, Q. Wang, Y. Li, and H. Dai, "Hysteresis Caused by Water Molecules in Carbon Nanotube Field-Effect Transistors," *Nano Letters* **3**, 193–198 (2003).
- [38] M. Gerardin, "No Title," *C.R Acad Sci Paris* **53**, 727 (1861).
- [39] F. Skaupy, "No Title," *Zeitschrift für Physik* **58**, 560 (1907).
- [40] H. Park, A. K. L. Lim, A. P. Alivisatos, J. Park, and P. L. McEuen, "Fabrication of metallic electrodes with nanometer separation by electromigration," *Applied Physics Letters* **75**, 301–303 (1999).
- [41] H. B. Heersche, G. Lientschnig, K. O'Neill, H. S. J. van der Zant, and H. W. Zandbergen, "In situ imaging of electromigration-induced nanogap formation by transmission electron microscopy," *Applied Physics Letters* **91**, 72107 (2007).
- [42] D. R. Ward, F. Huser, F. Pauly, J. C. Cuevas, and D. Natelson, "Optical rectification and field enhancement in a plasmonic nanogap," *Nature Nanotechnology* **5**, 732–736 (2010).

- [43] K. I. Bolotin, F. Kuemmeth, A. N. Pasupathy, and D. C. Ralph, "Metal-nanoparticle single-electron transistors fabricated using electromigration," *Applied Physics Letters* **84**, 3154–3156 (2004).
- [44] J. Moreland and J. W. Ekin, "Electron tunneling experiments using Nb-Sn "break" junctions," *Journal of Applied Physics* **58**, 3888–3895 (1985).
- [45] J. M. v. R. C.J. Muller and L. J. de Jongh, "Experimental observation of the transition from weak link to tunnel junction." *Physica C* **191**, 485054 (1992).
- [46] D. R. Strachan, D. E. Smith, D. E. Johnston, T.-H. Park, M. J. Therien, D. A. Bonnell, and A. T. Johnson, "Controlled fabrication of nanogaps in ambient environment for molecular electronics," *Applied Physics Letters* **86**, 43109 (2005).
- [47] A. Mahapatro, S. Ghosh, and D. Janes, "Nanometer scale electrode separation (nanogap) using electromigration at room temperature," *EEE Transactions on Nanotechnology* **5**, 232–236 (2006).
- [48] J. T. Lau, J. a. Prybyla, and S. K. Theiss, "In situ electron microscopy studies of electromigration in stacked Al(Cu)/TiN interconnects," *Applied Physics Letters* **76**, 164 (2000).
- [49] S. Shingubara and Y. Nakasaki, "Electromigration in a single crystalline sub-micron width aluminum interconnection," *Applied Physics Letters* **58**, 42–44 (1991).
- [50] P. Besser and M. Madden, "In situ scanning electron microscopy observation of the dynamic behavior of electromigration voids in passivated aluminum lines," *Journal of Applied Physics* pp. 3792–3797 (1992).
- [51] B. Stahlmecke, F. zu Heringdorf, and L. Chelaru, "Electromigration in self-organized single-crystalline silver nanowires," *Applied Physics Letters* **88**, 053122 (2006).
- [52] J. Tang, Y. Wang, C. Nuckolls, and S. J. Wind, "Chemically responsive molecular transistors fabricated by self-aligned lithography and chemical self-assembly," *Journal of Vacuum Science and Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures* **24**, 3227 (2006).
- [53] A. Mangin, "Transport électronique dans des nanocassures pour la réalisation de transistors à molécule unique," (2010).
- [54] Y. Blanter and M. Büttiker, "Shot noise in mesoscopic conductors," *Physics Reports* **336**, 1–166 (2000).
- [55] J. G. Simmons, "Generalized Formula for the Electric Tunnel Effect between Similar Electrodes Separated by a Thin Insulating Film," *Journal of Applied Physics* **34**, 1793 (1963).
- [56] A. Mangin, A. Anthore, M. L. Della Rocca, E. Boulat, and P. Lafarge, "Reduced work functions in gold electromigrated nanogaps," *Physical Review B* **80**, 1–5 (2009).
- [57] R. Fowler and L. Nordheim, "Electron emission in intense electric fields," *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* **119**, 173–181 (1928).

- [58] J. Beebe, B. Kim, J. Gadzuk, C. Daniel Frisbie, and J. Kushmerick, "Transition from Direct Tunneling to Field Emission in Metal-Molecule-Metal Junctions," *Physical Review Letters* **97**, 1–4 (2006).
- [59] M. L. Trouwborst, C. A. Martin, R. H. M. Smit, C. M. Guédon, T. A. Baart, S. J. van der Molen, and J. M. van Ruitenbeek, "Transition voltage spectroscopy and the nature of vacuum tunneling." *Nano Letters* **11**, 614–7 (2011).
- [60] R. M. Feenstra, "Scanning tunneling spectroscopy," *Surface Science* **299-300**, 965–979 (1994).
- [61] E. Huisman, M. Trouwborst, F. Bakker, B. van Wees, and S. van der Molen, "The mechanical response of lithographically defined break junctions," *Journal of Applied Physics* **109**, 104305 (2011).
- [62] H. Michaelson, "The work function of the elements and its periodicity," *Journal of Applied Physics* **48**, 4729–4733 (1977).
- [63] L. Olesen, M. Brandbyge, M. Sorensen, K. Jacobsen, E. Lægsgaard, I. Stensgaard, and F. Besenbacher, "Apparent barrier height in scanning tunneling microscopy revisited." *Physical Review Letters* **76**, 1485–1488 (1996).
- [64] C. Untiedt, A. Yanson, R. Grande, G. Rubio-Bollinger, N. Agraït, S. Vieira, and J. van Ruitenbeek, "Calibration of the length of a chain of single gold atoms," *Physical Review B* **66**, 1–6 (2002).
- [65] J. Aizpurua, G. W. Bryant, L. J. Richter, and F. J. García de Abajo, "Optical properties of coupled metallic nanorods for field-enhanced spectroscopy," *Physical Review B* **71**, 1–13 (2005).
- [66] D. P. Fromm, A. Sundaramurthy, P. J. Schuck, G. Kino, and W. E. Moerner, "Gap-Dependent Optical Coupling of Single Bow-Tie Nanoantennas Resonant in the Visible," *Nano Letters* **4**, 957–961 (2004).
- [67] E. Hao and G. Schatz, "Electromagnetic fields around silver nanoparticles and dimers," *The Journal of chemical physics* **120**, 357 (2004).
- [68] A. García-Martín, D. Ward, D. Natelson, and J. Cuevas, "Field enhancement in subnanometer metallic gaps," *Physical Review B* **83**, 4–7 (2011).
- [69] C. Huang, A. Bouhelier, G. Colas des Francs, A. Bruyant, A. Guenot, E. Finot, J. Weeber, and A. Dereux, "Gain, detuning, and radiation patterns of nanoparticle optical antennas," *Physical Review B* **78**, 155407 (2008).
- [70] A. Bouhelier, R. Bachelot, G. Lerondel, S. Kostcheev, P. Royer, and G. Wiederrecht, "Surface Plasmon Characteristics of Tunable Photoluminescence in Single Gold Nanorods," *Physical Review Letters* **95**, 4–7 (2005).
- [71] J. Butet, J. Duboisset, G. Bachelier, I. Russier-Antoine, E. Benichou, C. Jonin, and P.-F. Brevet, "Optical second harmonic generation of single metallic nanoparticles embedded in a homogeneous medium." *Nano Letters* **10**, 1717–21 (2010).
- [72] M. Lippitz and M. van Dijk, "Third-harmonic generation from single gold nanoparticles," *Nano Letters* **5**, 799–802 (2005).
- [73] P. Mühlischlegel, H.-J. Eisler, O. J. F. Martin, B. Hecht, and D. W. Pohl, "Resonant optical antennas." *Science (New York, N.Y.)* **308**, 1607–9 (2005).

- [74] M. Beversluis, A. Bouhelier, and L. Novotny, "Continuum generation from single gold nanostructures through near-field mediated intraband transitions," *Physical Review B* **68**, 1–10 (2003).
- [75] P. Ghenuche, S. Cherukulappurath, T. H. Taminiau, N. F. van Hulst, and R. Quidant, "Spectroscopic Mode Mapping of Resonant Plasmon Nanoantennas," *Physical Review Letters* **101**, 1–4 (2008).
- [76] J.-S. Huang, J. Kern, P. Geisler, P. Weinmann, M. Kamp, A. Forchel, P. Biagioni, and B. Hecht, "Mode imaging and selection in strongly coupled nanoantennas." *Nano Letters* **10**, 2105–10 (2010).
- [77] P. Franken, A. Hill, C. Peters, and G. Weinreich, "Generation of optical harmonics," *Physical Review Letters* **7**, 118–119 (1961).
- [78] N. Bloembergen, R. Chang, S. Jha, and C. Lee, "Optical second-harmonic generation in reflection from media with inversion symmetry," *Physical Review* **174**, 813 (1968).
- [79] M. Finazzi, P. Biagioni, M. Celebrano, and L. Duò, "Selection rules for second-harmonic generation in nanoparticles," *Physical Review B* **76** (2007).
- [80] G. Bachelier, I. Russier-Antoine, E. Benichou, C. Jonin, and P.-F. Brevet, "Multipolar second-harmonic generation in noble metal nanoparticles," *Journal of the Optical Society of America B* **25**, 955 (2008).
- [81] I. Russier-Antoine and E. Benichou, "Multipolar contributions of the second harmonic generation from silver and gold nanoparticles," *The Journal of Physical Chemistry B* **111**, 9044–9048 (2007).
- [82] M. Danckwerts and L. Novotny, "Optical Frequency Mixing at Coupled Gold Nanoparticles," *Physical Review Letters* **98**, 1–4 (2007).
- [83] S. Kim, J. Jin, Y.-J. Kim, I.-Y. Park, Y. Kim, and S.-W. Kim, "High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement." *Nature* **453**, 757–60 (2008).
- [84] S. Link, C. Burda, B. Nikoobakht, and M. a. El-Sayed, "Laser-Induced Shape Changes of Colloidal Gold Nanorods Using Femtosecond and Nanosecond Laser Pulses," *The Journal of Physical Chemistry B* **104**, 6152–6163 (2000).
- [85] S. Link, Z. Wang, and M. El-Sayed, "How Does a Gold Nanorod Melt?" *The Journal of Physical Chemistry B* **104**, 7867–7870 (2000).
- [86] H.-W. Chang, Y.-C. Tsai, C.-W. Cheng, C.-Y. Lin, Y.-W. Lin, and T.-M. Wu, "Nanostructured Ag surface fabricated by femtosecond laser for surface-enhanced Raman scattering." *Journal of colloid and interface science* **360**, 305–8 (2011).
- [87] J. Wang and C. Guo, "Ultrafast dynamics of femtosecond laser-induced periodic surface pattern formation on metals," *Applied Physics Letters* **87**, 251914 (2005).
- [88] K. Ko, A. Kumar, K. Fung, and R. Ambekar, "Nonlinear Optical Response from Arrays of Au Bowtie Nanoantennas," *Nano Letters* **11**, 61–5 (2011).
- [89] P. Ghenuche, "Probing the near-field optical response of plasmon nanostructures with two-photon luminescence microscopy," (2009).

-
- [90] J. Lambe and S. McCarthy, "Light emission from inelastic electron tunneling," *Physical Review Letters* **37**, 923–925 (1976).
- [91] J. Gimzewski, B. Reihl, J. Coombs, and R. Schlittler, "Photon emission with the scanning tunneling microscope," *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter* **72**, 497–501 (1988).
- [92] J. Kirtley, T. Theis, J. Tsang, and D. DiMaria, "Hot-electron picture of light emission from tunnel junctions," *Physical Review B* **27**, 4601 (1983).
- [93] F. Yin, R. Palmer, and Q. Guo, "Nanoscale surface recrystallization driven by localized electric field," *Physical Review B* **73**, 2–5 (2006).
- [94] X. W. Tu, J. H. Lee, and W. Ho, "Atomic-scale rectification at microwave frequency." *The Journal of chemical physics* **124**, 021105 (2006).
- [95] A. Thon, M. Merschdorf, W. Pfeiffer, T. Klamroth, P. Saalfrank, and D. Dieing, "Photon-assisted tunneling versus tunneling of excited electrons in metal-insulator-metal junctions," *Applied Physics A : Materials Science and Processing* **78**, 189–199 (2004).
- [96] P. Tien and J. Gordon, "Multiphoton process observed in the interaction of microwave fields with the tunneling between superconductor films," *Physical Review* (1963).

Troisième partie

**Guidage et focalisation d'un
plasmon de surface**

Chapitre 12

Introduction

Sommaire

12.1 Motivations	104
12.2 Les plasmons de surface délocalisés . . .	105
12.3 Confinement et guidage des SPPs . . .	107

Depuis près de 40 ans, les composants électroniques n'ont cessé d'être réduits en dimension. Cette miniaturisation a permis de diminuer le temps de réponse et d'augmenter la quantité d'information transférée de façon exponentielle tout en réduisant leurs coûts. De nos jours, les transistors de microprocesseurs d'ordinateurs sont gravés avec des dimensions de 45 nm. Depuis 2004, la miniaturisation des composants est devenue technologiquement plus compliquée à cause de problèmes liés à la dissipation thermique. Dans la microélectronique, les interconnexions sont réalisées à partir de cuivre et ou d'argent. La réduction en taille de celles-ci induit une augmentation de la résistance provoquant une dissipation thermique plus importante et contribuant à l'augmentation du temps de latence RC du composant [1]. Cependant, la vitesse des électrons à travers les interconnexions est connue et imposera une limitation de la fréquence de commutation aux alentours de 10 Gb/s.

L'une des solutions envisagée pour palier à ces problèmes (fréquence de coupure, temps de latence) consiste à remplacer les électrons par des photons. Le transport d'information par le biais des fibres optiques est nettement supérieur à celui des lignes électriques. En effet, celles-ci ne sont pas soumises à la dissipation thermique et la vitesse de la lumière est nettement supérieure à celle des électrons dans un solide. Cependant, la diffraction limite le confinement à des structures dont la taille est proche de λ . En effet, la lumière n'affecte pas particulièrement d'être confinée dans des objets dont les dimensions sont inférieures à la longueur d'onde. Un récapitulatif des limites concernant le domaine de l'électronique ainsi que celui de la photonique est proposé sur la figure 12.1. La principale limite pour l'électronique est actuellement le temps de réponse alors que, pour le domaine de la photonique, c'est un problème de dimension.

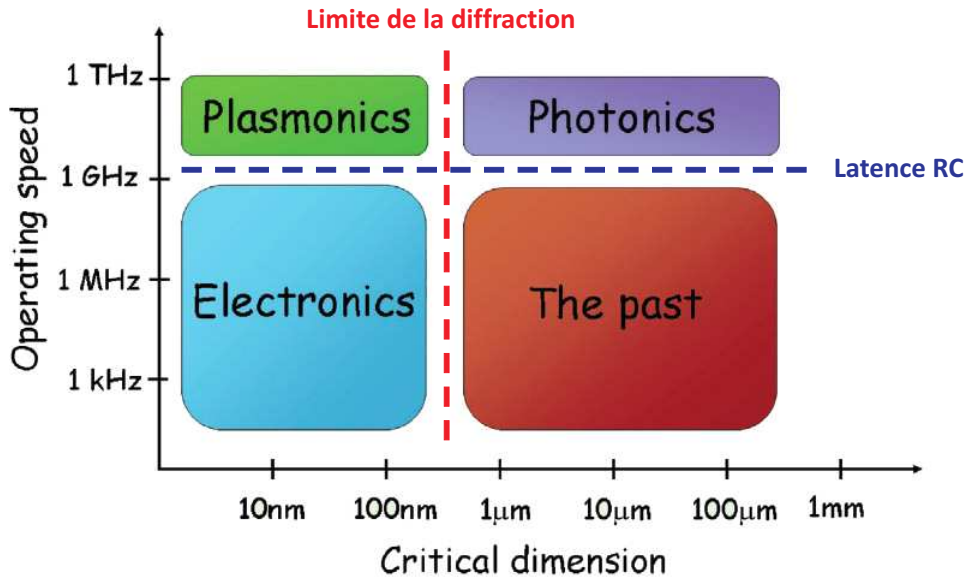


FIGURE 12.1 – Vitesse opérationnelle et dimension critique des différentes technologies de composants. Adaptée de [2]

Plusieurs alternatives ont été envisagées dans le but de coupler l'électronique et la photonique au sein d'un même composant. Une des alternatives concerne la technologie SOI (silicium sur isolant). Celle-ci est actuellement utilisée pour réduire la taille des composants optiques. Le silicium étant transparent et possédant un haut indice de réfraction aux longueurs d'ondes Télécom, les dimensions des guides sont comprises entre $0.5 \mu\text{m}$ et $1 \mu\text{m}$. Une autre alternative est proposée par l'utilisation de cristaux photoniques. Ces systèmes sont constitués de structures périodiques permettant de créer des circuits optiques non rectilignes avec un haut degré de confinement. Cependant leurs dimensions sont limitées par la diffraction, conduisant à privilégier le confinement par rapport aux nombres de composants. Une autre possibilité a été proposée et constitue aujourd'hui le domaine de la plasmonique. Celui-ci se trouvant à la croisée de la photonique et de l'électronique (cf. figure 12.1) pourrait constituer un moyen efficace et à moindre coût pour la réalisation de composants électro-optiques. Il a été montré qu'un composant utilisant des modes plasmons de surface à longue portée pouvait atteindre un transfert de 40 Gb/s ($\approx 10 \text{ Gb/s}$ pour un système électronique). Les dimensions des guides utilisés étaient dans ce cas là de $2.5 \mu\text{m}$ de large, 14 nm de haut et 4 cm de long [3]. Plus récemment, le projet européen PLATON a obtenu un transfert jusqu'à 0.5 Tb/s avec des guides plasmoniques polymère-métal [4, 5].

12.1 Motivations

Dans le cadre de cette thèse, nous avons utilisé des guides rubans plasmoniques de largeur finie en vue d'un couplage avec une nano-source de lumière pilotée électriquement (cf. partie II). La détermination des propriétés de guidages de ces structures est nécessaire avant de réaliser un couplage avec les sources

électroluminescentes. La forme du guide ainsi que sa largeur vont fortement influencer le couplage. Nous nous sommes rendus compte au cours de nos caractérisations de l'existence d'un nouveau phénomène. Les guides rubans supportent l'existence d'une onde uni-dimensionnelle. Cette partie de la thèse est consacrée à l'étude de la propagation d'un plasmon de surface sur un ruban métallique de largeur finie. Nous détaillerons dans un premier chapitre la méthode expérimentale utilisée ainsi que les méthodes numériques pour caractériser l'interaction entre un plasmon de surface et un bord métallique. Le second chapitre sera consacré à l'identification du phénomène ainsi qu'à ces propriétés de polarisation et d'excitation. Nous mettrons en évidence que cette onde unidimensionnelle ne consiste pas en un mode, mais d'une transformation d'un SPP en onde unidimensionnelle par diffraction sur les bords. Dans un troisième chapitre, nous montrerons que cette interaction du plasmon avec des bords est responsable de l'existence de la largeur de coupure des modes plasmons sur des guides rubans métalliques.

12.2 Les plasmons de surface délocalisés

Comme il a déjà été mentionné dans la partie I, les plasmons de surface se décomposent en deux familles : les plasmons localisés et les plasmons délocalisés. La première famille a déjà été traitée lors de la partie 1.1. Les plasmons de surface délocalisés sont associés à une onde évanescgente suivant la normale aux interfaces et pouvant se propager dans ce même plan (cf. figure 12.2). Cette onde est décrite comme un champ électrique de la forme :

$$\vec{E} = \vec{E}_p(z)e^{i(\vec{k}_{//} \cdot \vec{r}_{//} - \omega t)}e^{-\kappa_{\perp}z}, \quad (12.1)$$

avec $\vec{k} = (k_{//}, i\kappa_{\perp})$, $\kappa_{\perp} \geq 0$ pour $z \geq 0$ et $\kappa_{\perp} < 0$ pour $z < 0$. \vec{E}_p est la composante dans le plan d'incidence. La propagation du plasmon s'effectue suivant la direction y , c'est-à-dire $k_{//} = k_y \cdot \vec{e}_y$ (cf. figure 12.2).

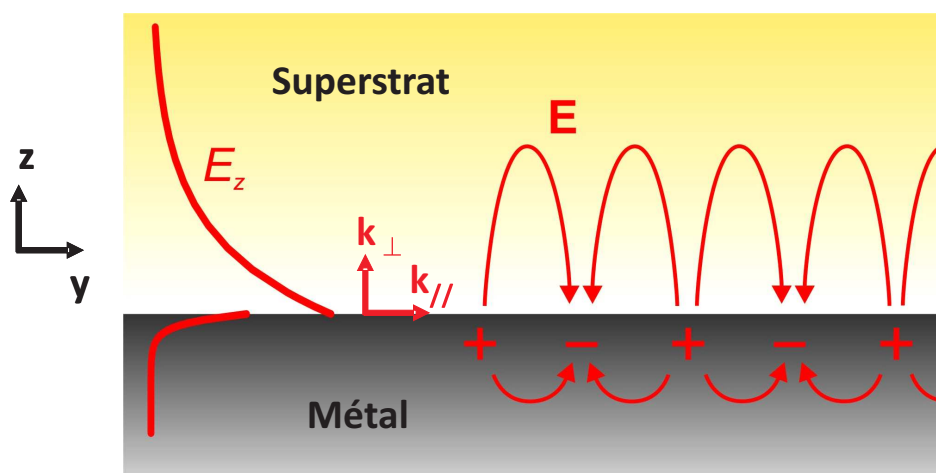


FIGURE 12.2 – Représentation schématique de l'oscillation d'un SPP.

Le vecteur d'onde k_{SPP} détient plusieurs informations pour décrire un SPP. Il est défini tel que :

$$k_{SPP} = k_y = k'_y + ik''_y. \quad (12.2)$$

A partir de ce vecteur d'onde, sont déterminés deux paramètres qui sont couramment utilisés pour décrire un SPP. Il s'agit de sa longueur de propagation (L_{SPP}) et de son indice effectif (n_{eff}). Ces deux grandeurs sont directement encodées dans le vecteur d'onde et sont définis par [6] :

$$L_{SPP} = \frac{1}{2k''_y} \quad (12.3)$$

$$n_{eff} = \frac{k'_y}{k_0} \quad (12.4)$$

Ces paramètres sont donc reliés à la relation de dispersion d'un mode plasmon de surface. Celle-ci est donnée par la relation suivante :

$$k_{spp}(\omega) = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_m(\omega)\epsilon_d}{\epsilon_m(\omega) + \epsilon_d}}, \quad (12.5)$$

avec ϵ_d et ϵ_m les constantes diélectriques respectivement du diélectrique et du métal. La constante diélectrique d'un métal étant de la forme $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$, il est alors possible de déterminer n_{eff} et L_{SPP} . L'excitation d'un plasmon de surface nécessite deux conditions. La première concerne la polarisation de l'onde incidente qui doit être polarisée transverse magnétique (TM) (cf. équation (12.1)). La seconde condition est liée à la relation de dispersion d'un mode plasmon. L'excitation d'un mode SPP requiert que la relation de dispersion d'une onde incidente ($\omega(k)$) et celle du plasmon (équation 12.5) se croisent. Le point d'intersection permet de déterminer l'indice effectif du mode plasmon excité.

Expérimentalement, il existe différentes méthodes permettant l'excitation d'un plasmon de surface. Celle-ci est à la fois possible avec des photons ou des électrons [6]. Dans le cas d'une excitation avec des électrons [7, 8, 9], ceux-ci doivent posséder une haute énergie (≈ 30 keV) et nécessite l'emploi de systèmes tels que des microscopes électroniques (MEB ou TEM). Ces électrons très énergétiques interagissent avec le métal et peuvent exciter un plasmon de surface, le plus souvent par perte d'énergie. L'autre moyen concerne l'excitation optique. Celle-ci est la méthode la plus couramment utilisée. L'excitation de modes plasmons nécessite que l'onde excitatrice possède des vecteurs d'ondes résonants. Dans le cas de la lumière il est nécessaire d'augmenter son vecteur d'onde pour réaliser l'excitation d'un SPP. Différentes méthodes comme la diffraction par un réseau de traits [6] ou de trous [10] ou encore la réflexion totale interne [11, 12] sont couramment utilisées. Cette dernière est la plus répandue. Il s'agit, dans ce cas, là de faire traverser une onde incidente dans un prisme d'indice optique n en réflexion totale interne. Le vecteur d'onde plasmon résultant de ce type d'équation est donné par la relation suivante :

$$k_{SPP} = k_0 n \sin \theta_{SPP}, \quad (12.6)$$

soit θ_{SPP} l'angle d'excitation pour lequel le SPP est excité. Grâce à l'équation (12.5) l'indice effectif du mode plasmon est connu, et il est alors possible de déterminer la

valeur de l'angle θ_{SPP} . Celui-ci est défini tel que :

$$\theta_{SPP} = \sin^{-1}\left(\frac{k_{SPP}}{k_0 n}\right) \quad (12.7)$$

Dans tous les cas θ_{SPP} est toujours supérieur à l'angle critique θ_c . Lorsque l'angle plasmon est atteint, il se produit un minimum de réflectivité dans le faisceau réfléchi [6].

12.3 Confinement et guidage des SPPs

Les modes plasmons de surface sont capables de se propager sur des distances de quelques dizaines de microns (voir quelques millimètres dans certaines conditions). Ceux-ci permettraient donc une transmission optique de l'information dans des composants. La réduction ainsi que la structuration du métal permet de confiner les modes plasmons de surfaces et de les guider. Cette capacité est donc un atout pour l'intégration de guides plasmoniques dans des circuiteries existantes. En effet, les différents composants d'une même puce sont souvent reliés par des pistes métalliques de faibles largeurs. Cette capacité de guidage a donné lieu à la fabrication de différentes formes de guides.

12.3.1 Les nano-fils

Le premier type de guide plasmonique a été proposé par Takahara et ses collègues en 1997 [13]. Il s'agissait d'un nano-fil métallique de faible diamètre supportant des plasmons de surface très confinés. Comme il n'existe pas de diamètre de coupure pour la propagation d'un mode, ce type de configuration permet à la fois à un guide de posséder de faibles dimensions et un confinement extrême du mode. La démonstration expérimentale d'un tel système guidant fut réalisée par la suite [14, 15, 16]. Un exemple d'image MEB d'un nano-bâtonnet obtenu par réduction chimique d'un film d'argent est présenté sur la figure 12.3 (a). L'observation en champ proche du SPP se propageant sur la structure est visible sur l'image (b). La longueur de propagation du mode est liée à la cristallinité des nano-fils [14, 17]. Dans le cas d'un objet parfaitement cristallin la propagation du mode plasmon peut atteindre plusieurs dizaines de microns [14, 16]. Généralement de telles structures sont fabriquées par des méthodes chimiques. A cause du procédé de fabrication, les géométries accessibles sont restreintes, et l'intégration dans un circuit est rendue compliquée.

12.3.2 Les guides rubans

Les guides rubans métalliques constituent la plus simple des géométries planaires pour guider et confiner un SPP. Cette configuration est facilement réalisable à partir de techniques conventionnelles de lithographie. Il s'agit de guides avec une section rectangulaire (cf. figure 12.3 (c)). Contrairement à un guide d'onde diélectrique dont la largeur et la hauteur sont comparables avec la longueur d'onde, les guides rubans métalliques ont une hauteur de l'ordre de 50 nm et une largeur de quelques microns.

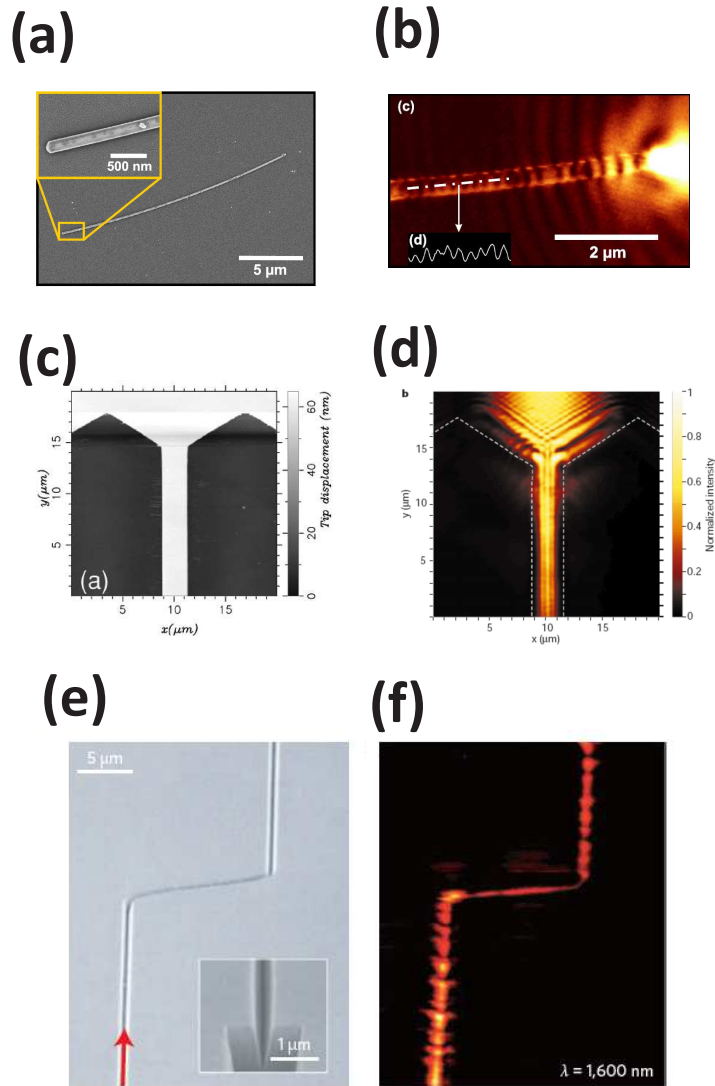


FIGURE 12.3 – Images de différentes géométries de guides plasmoniques. Pour chaque couple, l’image à gauche correspond à une image de la structure par microscopie électronique à balayage, et à droite l’image champ proche correspondante. En (a) est représenté un nano-fil d’argent obtenu par réduction chimique de sels d’argent ainsi que la propagation d’un plasmon de surface sur cette structure (b) (adaptées de [14]). En (c) il s’agit d’un guide ruban métallique de largeur finie, et en (d) la propagation d’un plasmon sur celui-ci (adaptées de [18]). L’image (e) présente un guide en forme de V et sur l’image (f) est montrée la propagation d’un mode plasmon dans cette structure (adaptées de [19]).

Dans ce type de guidage, il s’agit de confiner un plasmon de film sur une étendue plus restreinte de métal. Comme le montre l’image champ proche sur la figure 12.3 (d), le plasmon de film est confiné dans le guide de largeur finie. L’avantage de ce type de géométrie est la facilité d’intégration dans un circuit électronique. Néanmoins, ces guides présentent une largeur de coupure [20, 21], imposant une largeur minimum au guide pour la propagation d’un mode plasmon. Ce type de structure a déjà été utilisée pour réaliser des composants passifs tel que des guides courbés [22], des

miroirs [22, 23] ou des cavités plasmoniques [24].

Il a été choisi dans cette thèse de travailler avec ce type de structure guidante. Leur fabrication étant facilement réalisable au laboratoire. L'avantage de ces guides rubans est qu'ils peuvent s'apparenter à des connections électriques. Dans notre cas, de telles structures peuvent servir comme élément de grille pour les CN-FETs, ou comme électrodes pour les jonctions tunnels.

12.3.3 Autres structures guidantes

D'autres types de structures ont été étudiées dans le but d'améliorer la propagation d'un mode SPP par son confinement dans un diélectrique. Une méthode simple consiste à rajouter un ruban diélectrique au dessus d'un guide ruban métallique (DLSPPW pour dielectric loaded surface plasmon waveguide) [25, 26]. Dans ce type de structure, le mode plasmon est confiné dans le diélectrique comme dans le cas d'une fibre optique. Il a été montré qu'en dopant le polymère, il était alors possible d'augmenter la propagation d'un SPP en compensant les pertes liées à l'absorption par le métal [27].

Une autre géométrie comme des guides en V ont été expérimentées [28, 29, 30, 31, 32] (cf. figure 12.3 (e-f)). Ceux-ci supportent des modes plasmon polariton de canal (CPP pour channel plasmon polariton). Ces modes sont extrêmement confinés sur une arête métallique et peuvent se propager sur plusieurs dizaines de microns (cf. figure 12.3 (f)). L'avantage de telles structures réside dans un routage non rectiligne d'un plasmon. Cette particularité a notamment permis la création de composants passifs tels que des coupleurs, des interféromètres, ou encore des résonateurs [29]. Cependant, la fabrication de telles structures est compliquée. Elles sont basées sur des techniques précises de gravures métalliques [33].

Chapitre 13

Microscopie à fuites radiatives et outils numériques

Sommaire

13.1	Les fuites radiatives	111
13.2	Utilisation d'un objectif à immersion pour l'excitation d'un plasmon de surface	112
13.3	Le système de caractérisation	113
13.4	Imagerie de Fourier	115
13.5	Présentation des différentes méthodes numériques utilisées	119

Dans le cadre d'une configuration verre/or/air, il est possible d'exciter des modes plasmons dit à fuite. Ces modes dépendent de l'épaisseur du métal. Si celle-ci n'est pas trop grande (typiquement <70 nm), l'énergie du SPP se propageant à l'interface or/air, est convertie en ondes radiatives par le substrat (frustration de l'onde évanescente). La collection de ces fuites radiatives a donnée naissance à la microscopie du même nom [25, 34, 35, 36]. Il s'agit d'une technique d'imagerie en champ lointain, par opposition à la microscopie en champ proche (SNOM, PSTM). La description des fuites radiatives, ainsi que la méthode de microscopie, sont présentées dans ce chapitre.

13.1 Les fuites radiatives

La longueur de propagation L_{SPP} d'un plasmon est un paramètre permettant de le décrire et est reliée à la partie imaginaire du vecteur d'onde plasmon. Le fait que L_{SPP} soit faible est principalement lié à deux types de pertes. Il s'agit des pertes par absorption dans le métal et des pertes radiatives. La longueur de propagation

et les pertes du système sont reliées par la relation suivante [6] :

$$L_{SPP} = \frac{1}{2\Gamma}, \quad (13.1)$$

avec Γ la somme des pertes, c'est-à-dire l'absorption par le métal (Γ_i), et les pertes radiatives (Γ_R) :

$$L_{SPP} = \frac{1}{2(\Gamma_i + \Gamma_R)} = \frac{1}{2k_y''}. \quad (13.2)$$

Les pertes sont donc contenues dans le vecteur d'onde plasmon grâce à sa partie imaginaire. En fonction de l'épaisseur du métal, la longueur de propagation ainsi que les fuites détectées ne vont pas être les mêmes. Dans le cas où les pertes radiatives diminuent, la longueur de propagation augmente et inversement. H. Raether a démontré que dans le cas d'une excitation de type Kretschmann avec un métal d'épaisseur h et de constante diélectrique $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$, la réflectivité R s'écrit [6] :

$$R = 1 - \frac{4\Gamma_i\Gamma_R}{(k_y - k_{SPP})^2 + (\Gamma_i + \Gamma_R)^2}. \quad (13.3)$$

A condition que $|\epsilon_m''| \ll |\epsilon_m'|$ et que $|\epsilon_m'| \gg 1$. k_y représente le vecteur d'onde d'excitation. A la résonance plasmon, c'est-à-dire $k_y - k_{SPP} = 0$, il se produit un minimum de réflectivité dans le faisceau réfléchi. La résolution de l'équation conduit à $\Gamma_i = \Gamma_R$. Cela signifie que le faisceau réfléchi et les fuites radiatives du plasmon interfèrent destructivement. Il s'agit du cas le plus favorable pour la caractérisation d'un SPP avec une excitation de Kretschmann. Pour obtenir cette situation avec une longueur d'onde fixée, H. Raether a démontré qu'il existait une épaisseur optimale du métal h_{min} . Dans le cas d'un plasmon or/air pour une excitation dans le domaine du visible, cette épaisseur est aux alentours de 50 nm [36].

13.2 Utilisation d'un objectif à immersion pour l'excitation d'un plasmon de surface

L'excitation d'un plasmon de surface se fait, en configuration de Kretschmann, à un angle particuliers (θ_{SPP}). De plus, pour pouvoir observer la propagation d'un SPP, il est nécessaire que la surface d'excitation soit plus petite que L_{SPP} . Le remplacement des prismes par des objectifs à immersion a rendu possible l'observation des fuites radiatives et la propagation des SPPs [37]. Ceux-ci, de par leur grande ouverture numérique (O.N.), permettent d'accéder à des angles supérieurs à θ_c et permettent de focaliser un faisceau d'excitation en un spot de faible diamètre. Dans le cas d'un objectif à immersion, les angles sont liés à l'ouverture numérique par la relation suivante :

$$O.N. = n \sin(\theta). \quad (13.4)$$

Il est alors possible de définir pour chaque valeur de l'ouverture numérique un vecteur d'onde k tel que :

$$k/k_0 = n_{eff} = O.N. \quad (13.5)$$

Cette relation est la même que celle de l'indice effectif (cf. chapitre 12.3). Grâce à l'ouverture numérique il est donc possible d'associer une valeur d'indice effectif à un mode plasmon de surface.

L'explication de l'excitation d'un plasmon par un objectif à immersion est présentée sur la figure 13.1. L'obtention d'un faisceau focalisé le plus petit possible nécessite d'éclairer entièrement la pupille d'entrée d'un objectif à immersion. Pour cela le diamètre du faisceau est étendu pour correspondre en taille avec la pupille d'entrée de l'objectif ($\emptyset \approx 1$ cm) (cf. figure 13.1 (a)). Dans ce cas, tous les vecteurs d'ondes contenus dans l'ouverture numérique sont peuplés. Il y a donc simultanément l'excitation de deux plasmons contrapropagatifs [37]. Afin de contrôler et n'observer qu'un seul plasmon, il est nécessaire de dissymétriser l'excitation. La méthode consiste à réduire le diamètre du faisceau collimaté (cf. figure 13.1 (b)). Malgré la réduction effective de l'ouverture numérique, la taille du faisceau focalisé ($\approx 5 \mu\text{m}$) reste inférieure à la longueur de propagation d'un mode SPP (typiquement $L_{SPP} = 15 \mu\text{m}$ pour une interface or/air). Néanmoins, en réduisant l'ouverture numérique effective, l'angle nécessaire à l'excitation plasmon n'est plus accessible. Il suffit alors de déplacer latéralement le faisceau par rapport à l'axe optique, pour atteindre l'angle d'excitation plasmon (cf. figure 13.1 (c)) [35]. Dans ce type de configuration, l'objectif sert à la fois de système d'excitation et de détection.

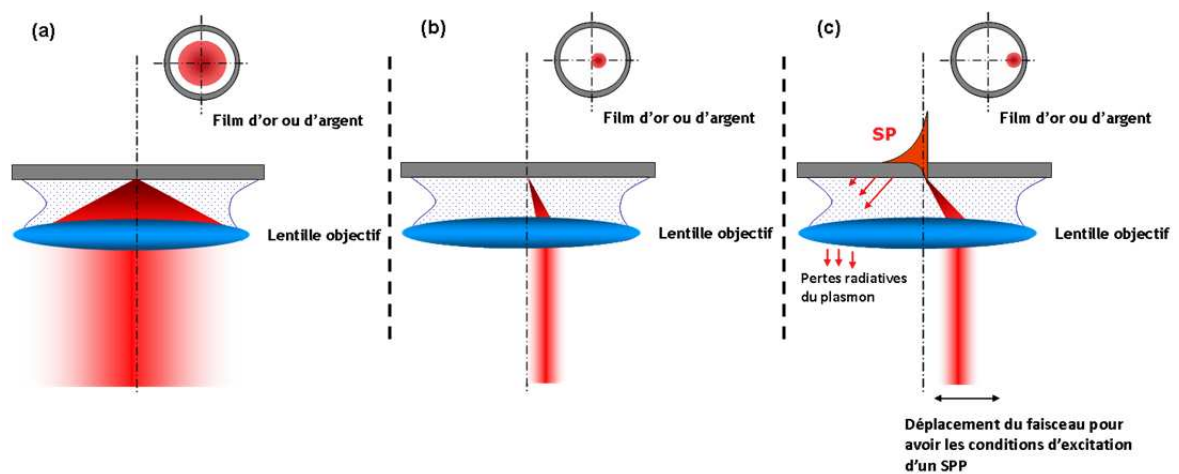


FIGURE 13.1 – Représentation schématique de l'utilisation d'un objectif à immersion pour l'excitation d'un SPP. (a) Ouverture numérique totalement illuminée par le faisceau laser, (b) Réduction de la taille du faisceau collimaté, (c) Déplacement latéral du faisceau réduit par rapport à l'axe optique pour l'excitation d'un SPP.

13.3 Le système de caractérisation

Nous avons développé au sein de l'équipe un microscope à fuites radiatives. Une représentation schématique de celui-ci est présentée sur la figure 13.2. La base du microscope est constituée par un microscope optique inversé de la marque Nikon (TE2000). L'excitation d'un SPP se fait par une configuration de type Kretschmann à l'aide d'un objectif à immersion d'huile avec une grande ouverture numérique

(O.N=1.49). L'excitation est réalisée par une source laser continue accordable entre 700 nm et 900 nm dont le faisceau est collimaté en un faisceau de faible diamètre ($\emptyset < 1$ mm). La polarisation est contrôlée par un couple polariseur/ lame demi-onde ($\lambda/2$). L'angle d'incidence du faisceau est ajusté pour obtenir les conditions d'excitation du plasmon ($\theta_{inc} = \theta_{SPP}$). Le déplacement de l'échantillon dans le plan (x, y) se fait par le biais d'une platine piézo-électrique. Le signal est ensuite focalisé sur le détecteur d'une caméra CCD placée au plan conjugué image du microscope.

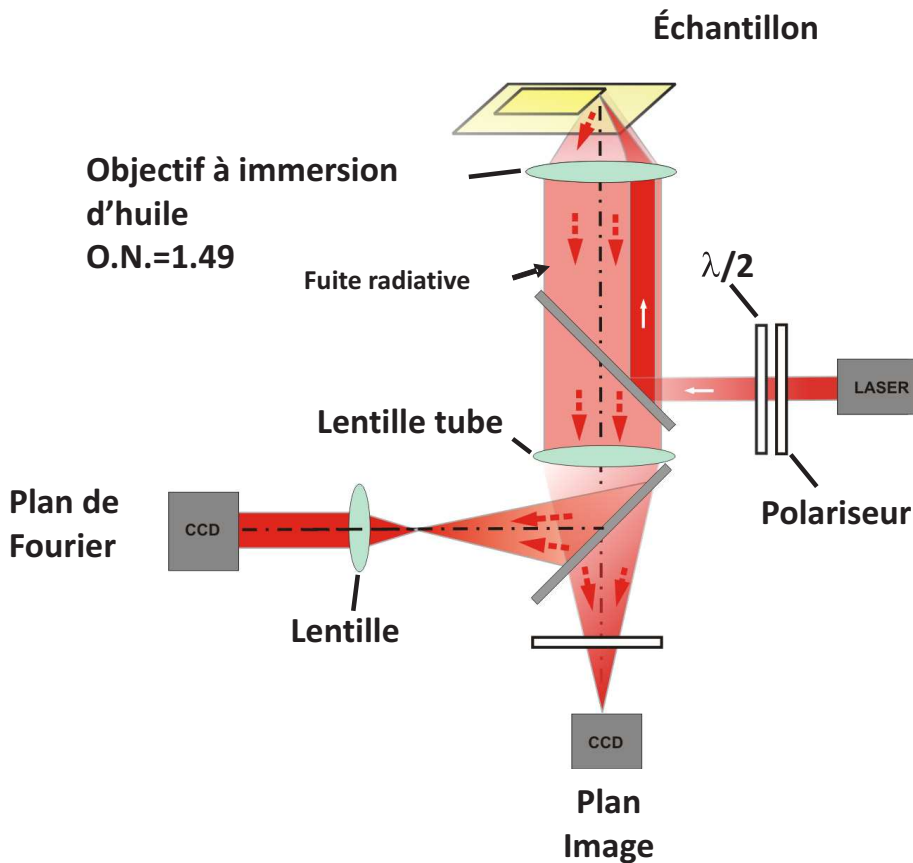


FIGURE 13.2 – Représentation schématique du microscope à fuites radiatives.

L'image 13.3 (a) est un exemple d'image obtenue avec le microscope. Il s'agit d'une image des fuites radiatives d'un plasmon de surface or/air excité à 780 nm, se propageant sur un film métallique de 45 nm d'épaisseur. La propagation du SPP se fait suivant la direction y . La zone d'excitation est contenue dans un cercle de diamètre $\approx 5 \mu\text{m}$. Sur la figure 13.3 (b) est représentée une coupe suivant la direction y . La courbe en noire représente l'intensité du plasmon. L'intensité associée à un plasmon dans le plan (x, y) est de la forme :

$$I(x, y) = I_0 e^{-y/L_{SPP}}. \quad (13.6)$$

La courbe en rouge représente un ajustement de la courbe en noire avec l'équation 13.6. L'accord entre la courbe calculée et l'intensité expérimentale permet d'obtenir expérimentalement une valeur pour L_{SPP} de 14 μm . Cette valeur de propagation est environ trois fois supérieur à la taille du faisceau laser focalisé. Nos conditions

expérimentales nous permettent d'observer la propagation d'un plasmon de surface par la collection de ses fuites radiatives.

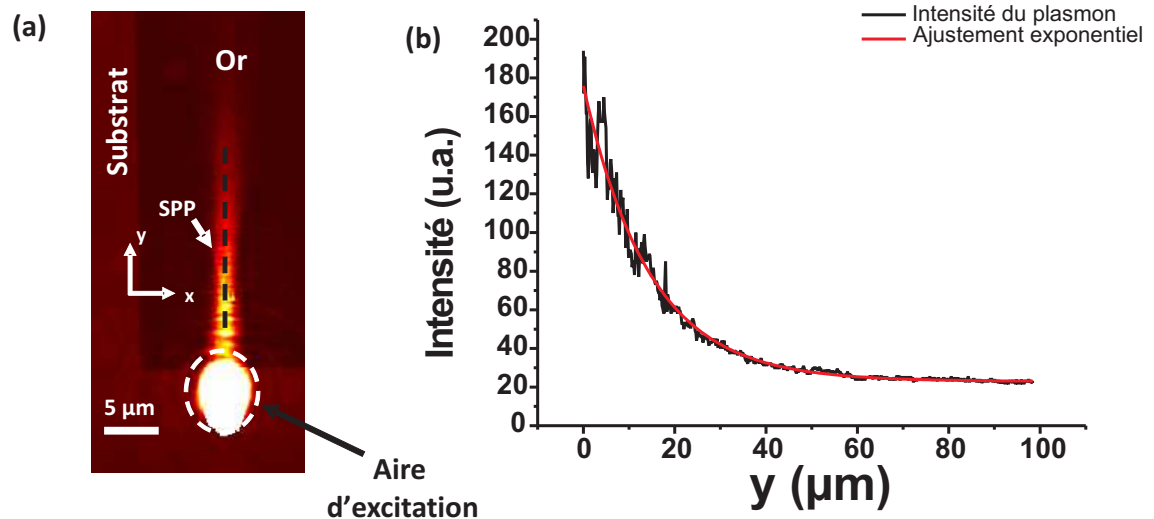


FIGURE 13.3 – a) Image d'un plasmon de surface or/air pour un film de 45 nm d'épais excité à 780 nm obtenue avec le microscope à fuites radiatives. b) Coupe le long de la direction y sur le plasmon (en noir). En rouge est représenté un ajustement de la courbe par une fonction exponentielle.

13.4 Imagerie de Fourier

L'avantage de ce type de microscope à fuites radiatives, réside dans la possibilité d'obtenir simultanément une information sur l'intensité du plasmon ainsi que sa décomposition en vecteurs d'ondes (imagerie de Fourier). L'insertion d'une lame séparatrice dans le trajet du faisceau permet de couper celui-ci en deux parties égales. L'une d'entre elles est focalisée par la lentille tube du microscope sur le capteur d'une caméra CCD. Cette partie donne accès à l'intensité du plasmon dans le plan image (cf. figure 13.3 (a)). La seconde partie du signal sert à obtenir une information sur la décomposition en vecteurs d'ondes d'un SPP. Comme le montre l'équation (13.5), il existe un lien entre l'ouverture numérique de l'objectif et les vecteurs d'ondes. De plus, un plasmon de surface peut être décrit par une valeur d'indice effectif $n_{eff} = k_{spp}/k_0$ qui dans le cas d'un objectif à immersion sera liée à l'ouverture numérique. Dans ce cas, réaliser une imagerie de l'espace réciproque revient à imager le plan focale arrière d'un objectif à immersion.

Le trajet lumineux du faisceau réfléchi dans notre système est représenté sur la figure 13.4. Le plan de Fourier est confondu avec la pupille de sortie de l'objectif et se trouve donc à l'intérieur de l'objectif. Ce plan n'étant pas accessible, il est nécessaire de réaliser une seconde transformée de Fourier à l'extérieur du système. Pour cela une lentille est ajoutée sur le trajet lumineux. Il faut que la distance entre le plan focal image du microscope et la lentille supplémentaire soit égale à la distance focale f_L de cette lentille supplémentaire (cf. figure 13.4). Le plan de Fourier ainsi formé se trouve alors à cette même distance après la lentille. En conjuguant

le plan du détecteur d'une caméra CCD et le plan de Fourier du microscope, il est possible d'imager la décomposition en vecteurs d'ondes d'un signal. Tous les plans de Fourier présentés dans cette partie ont été obtenus expérimentalement en ajoutant une lentille de focale $f_L=150$ mm.

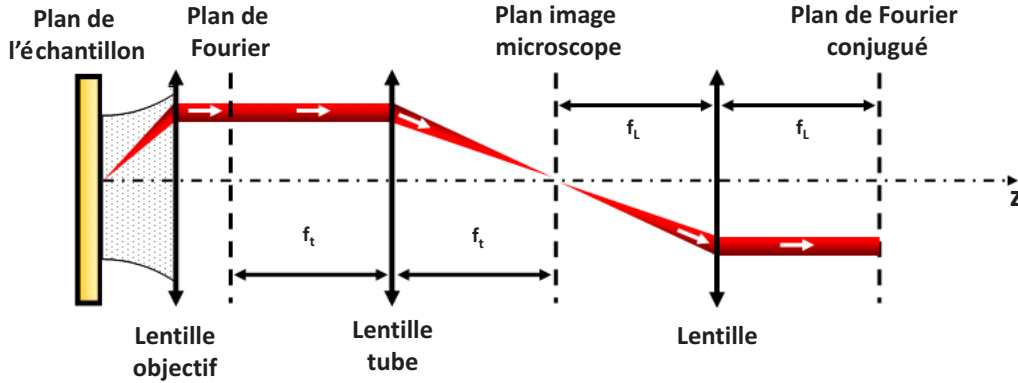


FIGURE 13.4 – Représentation schématique du trajet du faisceau réfléchi pour l'imagerie dans le plan de Fourier.

Un exemple est présenté sur la figure 13.5 (a). Cette image représente le plan de Fourier d'un faisceau focalisé sur une surface de verre et constitue une référence pour calibrer les images en valeur de k_i/k_0 , avec $i = x, y$ en rapport avec l'orientation dans l'espace réel. Dans ce cas précis, toute l'ouverture numérique de l'objectif a été éclairée permettant d'identifier le maximum de détection $n_{eff}=1.49=O.N.$ (représenté par un trait en tiret vert). La limite $n_{eff}=1$ (trait en tiret bleu) représente la limite des ondes propagatives ($n_{eff} < 1$) et des ondes évanescentes ($n_{eff} > 1$) [38]. Ces deux zones correspondent aussi aux zones de réflexion totale interne et de transmission de l'objectif, c'est pour cela que seul l'anneau $n_{eff} > 1$ est visible sur l'image. Par la suite, la direction de propagation du plasmon a toujours été choisie suivant la direction y . Lorsque le faisceau, toujours en éclairant toute l'ouverture numérique, est cette fois focalisé sur un film métallique, le plan de Fourier est modifié. Sur la figure 13.5 (b) est représentée la décomposition en vecteur d'onde pour une surface métallique d'or de 50 nm d'épaisseur excitée à 800 nm. Contrairement à l'image 13.5 (a), la limite $n_{eff}=1$ n'est plus visible, seul le maximum de détection l'est encore. L'autre différence est la présence de deux demi-cercles. Ceux-ci correspondent à la signature de deux SPP contrapropagatifs à k_{SPP}/k_0 [37] pour une excitation à 800 nm avec une polarisation TM. Grâce à la calibration réalisée préalablement, il est possible de déterminer l'indice effectif de ce mode plasmon. Celui-ci est donné par la relation suivante :

$$n_{eff} = \frac{1}{k_0} \sqrt{k_x^2 + k_y^2} = \frac{k_{SPP}}{k_0} = 1.03. \quad (13.7)$$

Comme les fuites radiatives sont en opposition de phases avec le faisceau réfléchi, la signature du plasmon est représentée par un minimum de réflectivité et donc la signature du plasmon apparaît comme un minimum d'intensité [6].

En réduisant l'O.N. effective de l'objectif pour dissymétriser l'excitation du SPP, les vecteurs d'ondes d'excitations sont maintenant contenus dans un espace

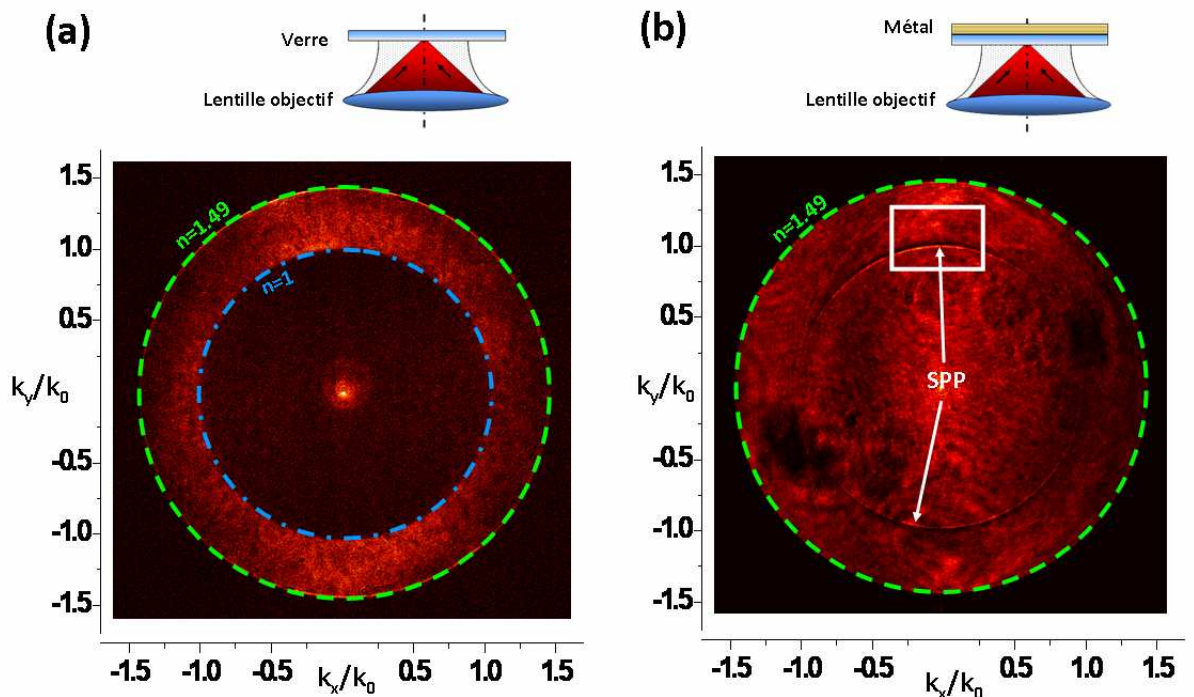


FIGURE 13.5 – Représentation d’un plan de Fourier obtenu en imageant le plan focal arrière de l’objectif en éclairant toute la pupille d’entrée de l’objectif pour un spot focalisé sur une surface de verre en (a) et pour une surface de 50 nm d’or en (b).

réciproque limité comme le montre la figure 13.6. Ce plan de Fourier est limité aux vecteurs d’ondes compris dans le cadre blanc représenté sur la figure 13.5. La représentation a été volontairement limitée à la zone d’intérêt. L’excitation est maintenant contenue dans un cercle de diamètre $\Delta k = 0.25 k_0$ (tirets blancs). En fonction de la position de l’excitation par rapport au métal, il est possible de changer le contraste de la signature d’un mode plasmon dans les plans de Fourier. Lorsque le spot d’excitation est focalisé sur une partie métallique, la signature du mode plasmon apparaît comme un minimum d’intensité. C’est le mode de fonctionnement classique avec une excitation de type Kretschmann. Nous appellerons par la suite ce mode d’excitation, le mode **”excitation par vecteur d’onde résonant”**. Dans le cas où l’excitation est focalisée sur du verre, mais à proximité d’une surface métallique, il est possible d’exciter un SPP par recouvrement de champ de l’onde évanescente créée par réflexion totale interne. La signature du mode apparaît cette fois dans les plans de Fourier comme un maximum d’intensité (cf. figure 13.6 (b)). Nous appellerons par la suite ce mode d’excitation, le mode **”excitation par recouvrement de champ”**.

L’imagerie dans l’espace réciproque permet d’obtenir une information sur le vecteur d’onde k_{SPP} d’un SPP. La propagation du plasmon étant choisie suivant la direction y , l’obtention d’information dans les plans de Fourier est accessible suivant l’axe k_y/k_0 . La réalisation d’une coupe suivant la direction k_y/k_0 à $k_x/k_0 = 0$ permet d’obtenir la courbe de réflectivité du mode plasmon. Comme le montre l’équation

(13.3), l'intensité de signal enregistrée dans les plans de Fourier peut être approximée par une forme Lorentzienne :

$$I(k_x = 0, k_y) = \frac{I_0}{(k_y - k_{SPP})^2 + \Delta n_{eff}^2}, \quad (13.8)$$

soit Δn_{eff} la largeur à mi-hauteur de la Lorentzienne. Cette quantité est reliée à la longueur de propagation du mode plasmon par $\Delta n_{eff} = 1/L_{SPP}$ [39]. Des sections suivant la direction k_y/k_0 pour $k_x/k_0 = 0$ ont été effectuées sur les images 13.6(a-b) (lignes en pointillés verts).

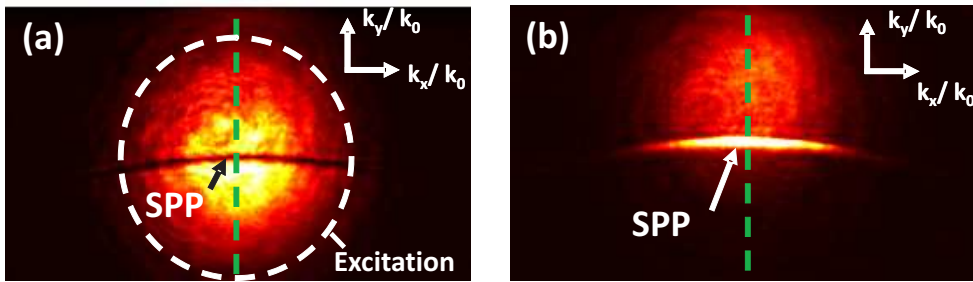


FIGURE 13.6 – Zone d'intérêt dans le plan de Fourier correspondant au carré blanc sur la figure 13.5. Il s'agit de la signature d'un plasmon sur un film d'or de 50 nm d'épaisseur pour deux contrastes différents : en (a) sombre et en (b) clair.

En effectuant des ajustements de courbes pour les deux contrastes avec une équation du même type que l'équation 13.8, il est alors possible d'extraire l'indice effectif du mode plasmon ainsi que sa longueur de propagation. Les résultats sont présentés sur la figure 13.7. Pour les deux types d'excitations, les résultats des ajustements ont donné la même valeur pour l'indice effectif ($n_{eff}=1.03$) ainsi que pour $\Delta n_{eff}=0.0098$. Le calcul de la longueur de propagation donne $L_{SPP}=13 \pm 2 \mu\text{m}$. Cette valeur est en accord avec celle obtenue à partir du plan image (cf. figure 13.3) qui était de $14 \mu\text{m}$.

Nous avons donc la même information dans les plans de Fourier ainsi que dans les plans images concernant la longueur de propagation. De plus, le fait de pouvoir inverser le contraste dans les plans de Fourier tout en gardant la même information peut s'avérer utile en fonction de l'échantillon à observer. Ces "outils" seront très utilisés dans le chapitre 14.

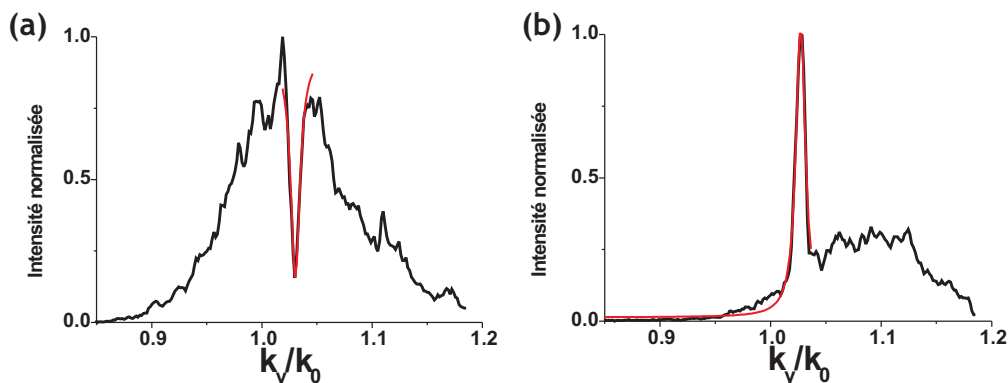


FIGURE 13.7 – Coupe le long des pointillés verts sur les figures 13.6(a-b). En noir est présenté le signal et en rouge l’ajustement par une Lorentzienne au niveau de la signature du mode plasmon.

13.5 Présentation des différentes méthodes numériques utilisées

Nous avons précédemment présenté et détaillé les outils expérimentaux utilisés pour caractériser les plasmons de surface pendant cette thèse. Pour confirmer les observations expérimentales, des simulations numériques sur la propagation de SPP sur des guides rubans ont été réalisées. Cette thèse étant plutôt expérimentale, je me suis juste contenté d’utiliser des codes disponibles et élaborés par des chercheurs du laboratoire. Dans cette section sont décrites brièvement les méthodes et principes employés.

13.5.1 La méthode différentielle

Les codes utilisés ont été développés au sein de l’équipe par Jean-Claude Weeber. A l’origine, cette méthode numérique a été développée pour calculer des champs électromagnétiques dans des structures périodiques, comme par exemple des réseaux de diffraction. Nous nous contentons ici de présenter brièvement le fonctionnement de cette méthode. Le développement, ainsi que le raisonnement mathématique sont expliqués dans les références [40, 41]. Comme cette méthode nécessite un système périodique, il est nécessaire de périodiser les structures à étudier. Nous sommes intéressé par l’étude d’un guide ou d’une structure unique et non un ensemble, c’est pourquoi il est important de choisir une période ”D” suffisamment grande pour éviter tout couplage entre elles. Une représentation schématique du système étudié avec cette méthode est présentée sur la figure 13.8. La méthode différentielle différencie deux zones où les champs électromagnétiques ne sont pas calculés de la même façon. La première zone, appelée zone homogène, concerne le substrat et le superstrat. Les champs électromagnétiques dans cette zone sont parfaitement décrits par un développement en série de Rayleigh. Par exemple le champ magnétique dans le superstrat est décrit par la forme :

$$\vec{H}^{Super} = \sum_m h_m e^{i\vec{k}_m \cdot \vec{r}}. \quad (13.9)$$

Le vecteur d'onde associé est de la forme :

$$\vec{k}_m = \begin{cases} k_{m,x}^{super} &= \sqrt{\epsilon_{sub}} k_0 \sin(\theta) \cos(\phi) + m \frac{2\pi}{D} \\ k_y &= \sqrt{\epsilon_{sub}} k_0 \sin(\theta) \sin(\phi) \\ k_{m,z}^{super} &= \sqrt{\epsilon_{super} k_0^2 - k_{m,x}^2 - k_y^2}. \end{cases}$$

Avec ϵ_{super} et ϵ_{sub} respectivement la constante diélectrique du superstrat et du substrat. Les coefficients h_m sont les coefficients de Rayleigh à déterminer (concerne le champ transmis). θ est l'angle d'incidence du faisceau, alors que ϕ est l'angle sélectionnant la direction de propagation du plasmon.

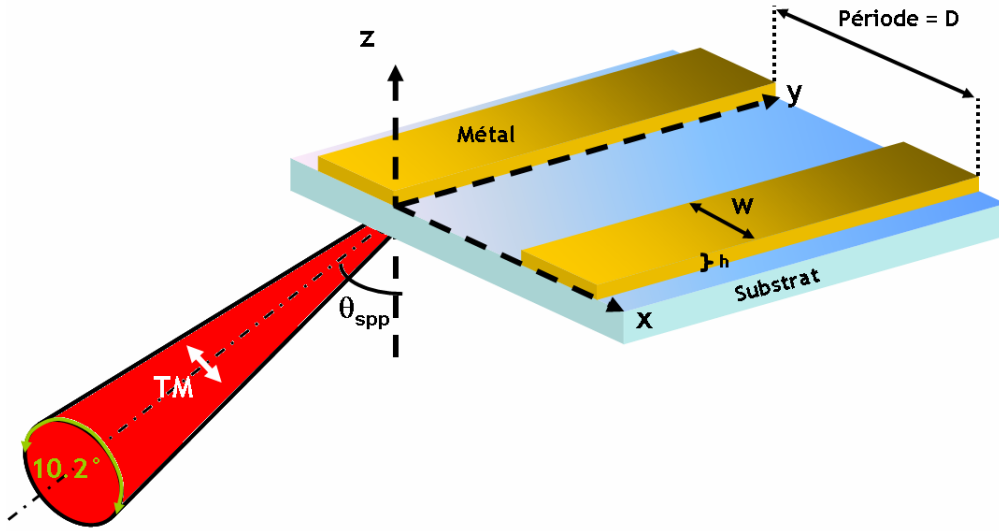


FIGURE 13.8 – Représentation schématique d'un type de structure utilisée avec la méthode différentielle.

La seconde zone est appelée la zone modulée. Le développement en série de Rayleigh n'est plus valable dans cette partie. Néanmoins, le fait d'avoir une structure périodique permet le développement des champs sous forme de série de Fourier. Les champs s'écrivent alors sous la forme :

$$H(x, y, z) = \sum_m H_m(z) e^{i(k_{m,x}x + k_y y)}. \quad (13.10)$$

Les solutions dans ce cas là sont données par la résolution numérique des coefficients de Fourier $H_m(z)$ à l'aide de l'équation de propagation :

$$\Delta H(x, y, z) + k_0^2 \epsilon(x, y) H(x, y, z) = 0. \quad (13.11)$$

Dans ce cas, la constante diélectrique se développe aussi en série de Fourier. Elle est de la forme :

$$\epsilon = \sum_p \epsilon_p e^{i \frac{2\pi}{D} p x}. \quad (13.12)$$

Il ne reste plus qu'à déterminer les coefficients de Rayleigh m dans les zones homogènes grâce aux relations de continuités aux différentes interfaces.

L'excitation est réalisée grâce à la modélisation d'un faisceau gaussien focalisé en trois dimensions. Le faisceau est décomposé en ondes planes avec une divergence d'angle de 10° environ autour de l'angle plasmon représenté par θ_{SPP} . L'angle ϕ est fixé à 90° afin de propager un plasmon de surface dans la direction y . Le centre du spot d'excitation peut être ajusté à volonté dans le plan (x, y) . La cartographie d'intensité du champ électrique est obtenue pour une altitude d'observation choisie par l'utilisateur.

13.5.2 La méthode des éléments finis : utilisation de Comsol

Nous avons réalisé quelques simulations à partir du logiciel commercial *COM-SOL MULTIPHYSICS module électromagnétique*. Il s'agit d'un système utilisant la méthode des éléments finis. Ce type de méthode est très utile pour résoudre numériquement des équations aux dérivées partielles. Avec ce type de logiciel, il est possible de calculer l'interaction d'une onde électromagnétique avec un objet de forme arbitraire (guide rectangulaire, pentagone etc.). La représentation schématique du système utilisé pour les simulations est présentée sur la figure 13.9. Les calculs ont uniquement été effectués en deux dimensions, c'est-à-dire dans le plan (x, z) .

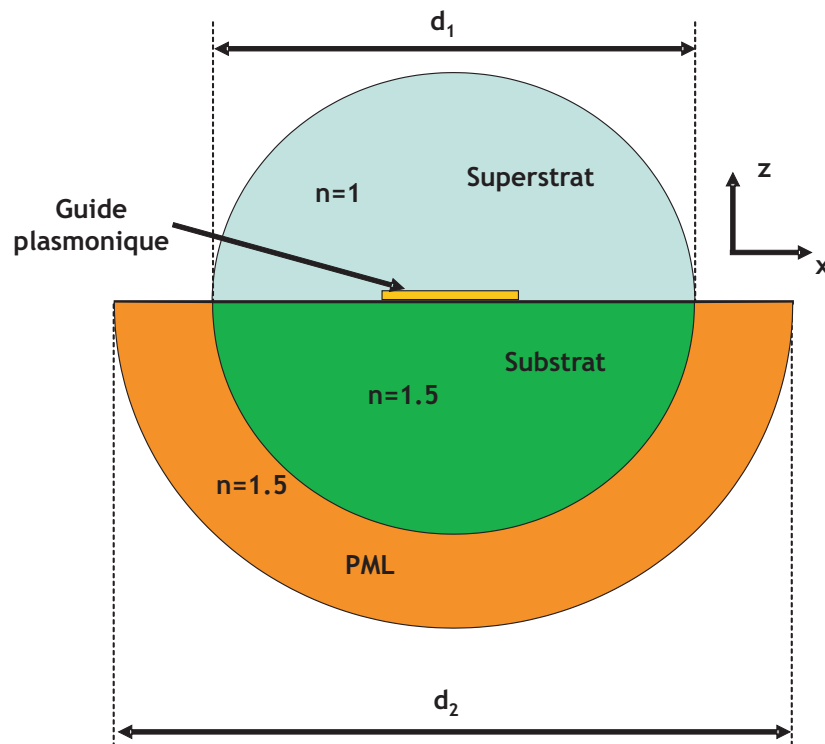


FIGURE 13.9 – Représentation schématique de la géométrie utilisée par comsol pour les simulations.

En premier lieu il est nécessaire de définir une fenêtre de calcul. Celle-ci dans notre cas est représentée par le cercle de diamètre d_1 . En fonction du signe de z celle-ci correspondra soit au substrat (pour $z < 0$) soit au superstrat (pour $z > 0$). Nous avons utilisé une fenêtre de $7.5 \mu\text{m}$ pour les simulations. La structure à étudier est ensuite dessinée à l'intérieur de cette fenêtre de calcul. Il s'agit de guides

rectangulaires de hauteur $z=50$ nm et de largeur variable. Le centre du guide est pris à $x=0$ dans tous les cas. Le substrat est considéré comme un conducteur électrique parfait par le logiciel, autrement dit lorsque les ondes vont rencontrer la limite de la zone d'observation celles-ci vont être totalement réfléchies. Nous sommes intéressés par l'observation des fuites radiatives du plasmon. Il est donc nécessaire que ces ondes ne soient pas réfléchies. Il existe différents outils numériques permettant de résoudre ce problème. Dans notre cas nous avons inséré une couche d'absorption parfaite (PML pour perfectly matched layer). Celle-ci est représentée par la zone en orange sur la figure 13.9. Cette PML a pour but d'absorber le champ pour que celui-ci ne soit pas réfléchi. Dans nos simulations la taille de la PML utilisée est de $d_2=10 \mu\text{m}$. L'ensemble de la structure (PML+ guide + fenêtre de calcul) est ensuite discrétisé grâce à un "maillage". Dans le cas des éléments finis, ce maillage est constitué de zones triangulaires ou parallélépipédiques dont l'aire varie. Le maillage est cependant plus resserré autour de l'objet à étudier. Le logiciel cherche ensuite les solutions résolvant le système d'équation aux dérivées partielles. Dans notre cas, le calcul consistait à trouver les indices effectifs des modes pouvant se propager sur un guide métallique de longueur infinie et de largeur finie.

Chapitre 14

Interaction d'un plasmon de surface avec un bord métallique

Sommaire

14.1	Présentation du phénomène	124
14.2	Influence de la polarisation incidente et analyse des composantes de l'onde 1D d'arête.	129
14.3	Structuration, influence du milieu diélectrique : quels effets sur l'onde 1D ?	131
14.4	Confirmation de la diffraction du plasmon en une onde unidimensionnelle . .	137

Le guidage ainsi que le confinement d'un mode plasmon de surface sont réalisés par la structuration de la surface métallique. Cette introduction de singularités géométriques [28, 30, 32] ou de discontinuités [20, 21] influe directement sur le comportement du plasmon. Il est nécessaire de comprendre et de prendre en compte l'interaction du SPP avec ses arêtes métalliques pour le développement des composants futurs. Dans le cas d'un guide métallique planaire, la discontinuité est formée par une arête à 90° séparant le métal du milieu diélectrique. Ce problème a déjà été étudié théoriquement par Wallis et ses collègues pour un plasmon se propageant en incidence normale par rapport à la discontinuité [42]. Récemment, un modèle numérique a même été proposé pour traiter ce genre d'interaction [43]. En fonction de l'environnement diélectrique, les bords se comportent comme d'excellents diffuseurs plasmoniques et sont donc de mauvais réflecteur. La confirmation expérimentale de cette analyse théorique sera donnée par Dawson et ses collègues [44]. Cependant, il existe très peu d'étude concernant l'interaction d'un bord métallique et d'un plasmon se propageant le long de celui-ci comme c'est le cas dans un guide.

Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes donc intéressé à caractériser

expérimentalement cette interaction. Dans ce chapitre sont présentés les résultats sur l'étude de l'interaction d'un plasmon de surface se propageant le long d'un bord métallique.

14.1 Présentation du phénomène

Pour réaliser cette étude, il a été nécessaire de fabriquer des bords métalliques uniques, avec un angle au sommet le plus proche possible de 90° . La solution retenue consiste à créer par lithographie à faisceau d'électron des rectangles d'or de dimensions $120 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$. Ce type de structure permet de ne considérer l'interaction du plasmon qu'avec une seule des deux arêtes à la fois. Pendant toute la durée de l'étude la propagation du plasmon a été choisie alignée avec la direction y et l'origine du repère correspond à un coin de la structure métallique (cf. figure 14.1 (a)). Comme l'étude porte sur l'interaction de l'arête, il est nécessaire de vérifier le profil ainsi que la rugosité de celle-ci. Une imagerie par AFM a permis d'obtenir ces informations. Comme le montre la topographie AFM sur la figure 14.1 (b), la rugosité au niveau de l'arête est peu différente de celle sur le film. Nous avons évalué sur toute la structure une rugosité moyenne de l'ordre de 1.3 nm RMS. Toutefois cette valeur est augmentée à 1.8 nm RMS par la présence de débris à proximité de la structure. Une section suivant la direction perpendiculaire à l'arête (ligne pointillés verts) est représentée sur la figure 14.1 (c). Celle-ci confirme que la rugosité est entre l'arête et le film est du même ordre de grandeur. Cette section nous renseigne également sur la hauteur de la structure. Dans le cas de cet échantillon, celle-ci est de l'ordre de 60 nm.

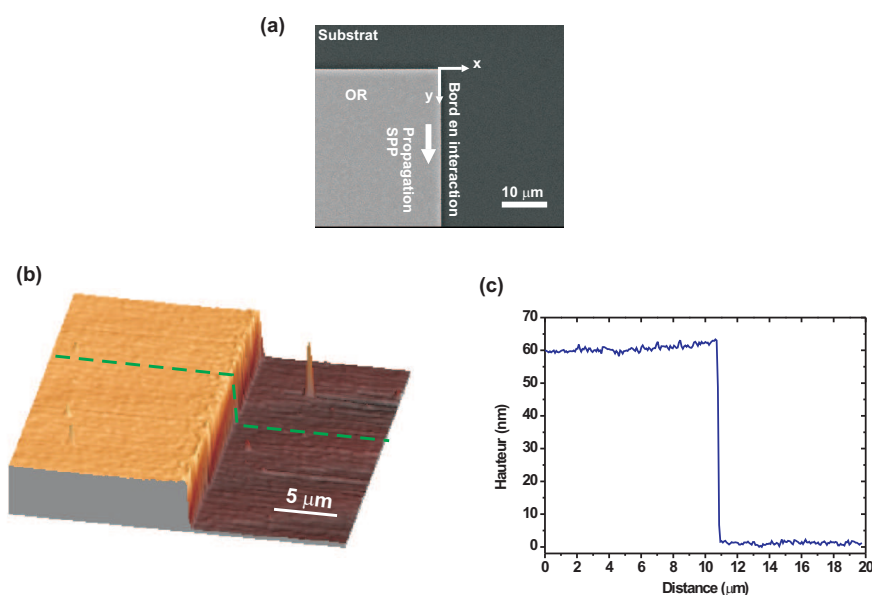


FIGURE 14.1 – (a) Image MEB d'un coin d'une structure rectangulaire fabriquée par lithographie e-beam. (b) Image AFM d'un bord d'une structure lithographiée. La rugosité moyenne de surface est de l'ordre de 1.8 nm RMS. (c) Section suivant la direction x depuis l'image AFM en (b) suivant la ligne en pointillés verts.

Ce type de structure rectangulaire a ensuite été étudié par le biais du microscope présenté lors du chapitre précédent. Le centre du spot d'excitation ainsi que le coin de la structure sont placés de sorte à coïncider. Le résultat obtenu est présenté sur la figure 14.2. La taille du spot d'excitation est d'environ $5 \mu\text{m}$. Les limites du rectangle sont repérées par des pointillés blancs. La structure apparaît en noire sur l'image (image en transmission), alors que la partie claire correspond au substrat (verre). Le plasmon de surface est visible sur la partie métallique comme attendu. Ce qui l'est moins en revanche, c'est la forte intensité présente sur le bord de la structure. Celle-ci semble se propager tout en restant confinée sur le bord. Une section suivant la direction x à une distance d'environ $12 \mu\text{m}$ de l'origine (ligne en pointillés verts dans (a)) est représentée sur la figure 14.2. Sur cette coupe sont visibles l'intensité du plasmon et une forte intensité sur l'arête. Nous avons normalisée l'intensité par le maximum de la courbe. Le résultat montre que l'intensité du plasmon est 80% moins intense que celle sur le bord.

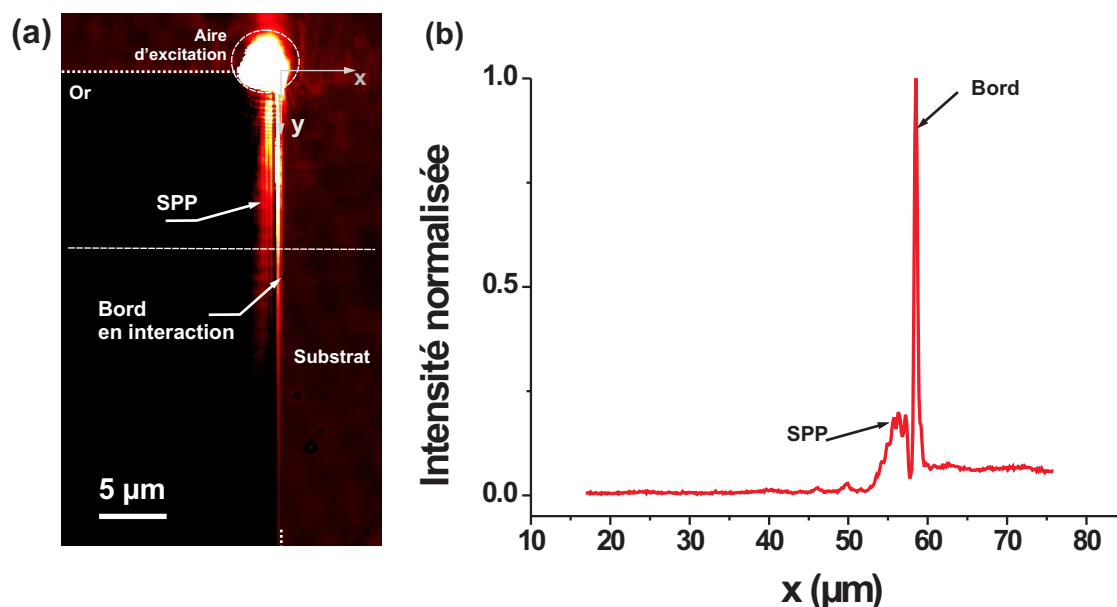


FIGURE 14.2 – (a) Image de l'intensité d'un SPP en interaction avec l'arête. Le spot d'excitation est délimité par le cercle en pointillés blancs. La propagation du plasmon se fait suivant la direction y . (b) Coupe au niveau de la ligne en pointillés verts sur (a). L'intensité a été normalisée par rapport à son maximum.

Grâce à ce microscope, il est possible d'effectuer une analyse de l'image 14.2 dans l'espace réciproque. A partir de cette information, il va être possible de déterminer certaines propriétés de cette intensité lumineuse localisée sur l'arête. La figure 14.3 présente la décomposition en vecteurs d'ondes de la situation présentée sur la figure 14.2. Comme énoncé précédemment, il est possible en fonction de la position du spot d'excitation par rapport à la structure métallique de changer le contraste dans les plans de Fourier (PF). Dans le cas de la situation présentée sur l'image 14.2, l'inversion de contraste s'obtient en déplaçant l'échantillon par rapport au spot suivant la direction y . Dans le cas d'une excitation par vecteur d'onde résonant (contraste sombre), le spot est décalé vers les valeurs y positives, alors que pour une excitation

par recouvrement de champ, le centre du spot coïncide avec le coin de la structure. L'aire d'excitation est contenue dans un aire de $k_y = (1.1 \pm 0.2)k_0$ et $k_x = \pm 0.25k_0$.

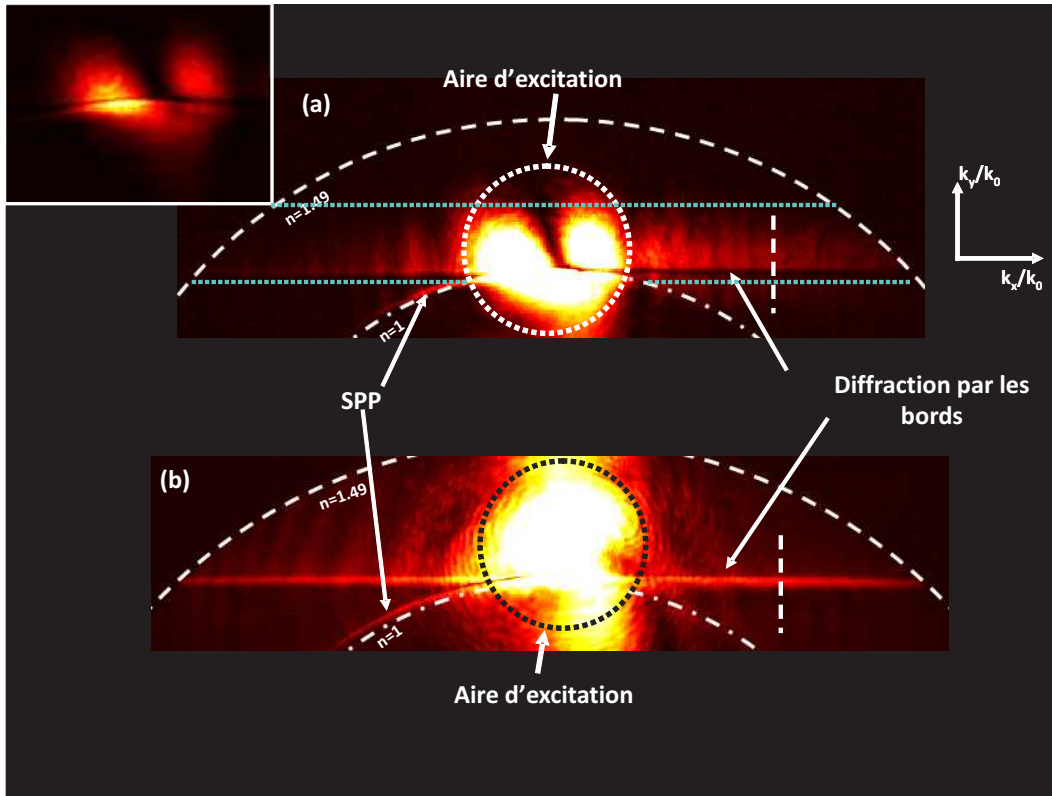


FIGURE 14.3 – Plan de Fourier de la situation présentée dans la figure 14.2, pour (a) une excitation par vecteur d'onde résonant et (b) en recouvrement de champ.

Pour une excitation par vecteur d'onde résonant (cf. figure 14.3 (a)), la signature du mode plasmon se propageant dans le métal est un arc de cercle sombre situé dans le spot d'excitation (insert en haut de la figure). Le spot d'excitation étant placé à cheval sur l'arête métallique, celui-ci est diffracté suivant la direction k_x/k_0 avec la même étendue suivant k_y/k_0 que l'excitation (zone délimité par les traits en pointillés bleus). De plus cette position entraîne une modification de l'aire d'excitation d'où la forme du spot. Un arc de cercle brillant est visible pour la partie négative de l'axe k_x/k_0 et correspond à la prolongation de la signature du plasmon repéré sur l'image 14.2. Le fait que cette signature apparaisse comme un maximum d'intensité est lié à la seule présence des fuites radiatives. Cette région se trouvant en dehors de la zone d'excitation ainsi que de la diffraction du faisceau par l'arête, il ne peut pas y avoir d'interférences destructives entre les vecteurs d'ondes. Nous avons mesuré expérimentalement que l'indice du mode plasmon dans ce cas là était de $n_{eff} = \frac{1}{k_0} \sqrt{k_x^2 + k_y^2} = 1.03$. L'interaction du spot avec l'arête conduit à l'apparition d'une ligne noire dans la zone de diffraction du faisceau. Cette interaction fait penser au même type d'interaction que celle responsable du contraste sombre du plasmon. De plus, cette ligne noire prend toutes les valeurs possibles suivant $|k_x|/k_0$ alors qu'elle semble fixée à une seule valeur suivant k_y/k_0 .

Afin de vérifier que cette ligne noire est bien la signature de l'arête métallique

dans les plans de Fourier, l'excitation a été faite par recouvrement de champ. Le résultat est présenté sur la figure 14.3 (b). Encore une fois, le plasmon est visible sur la gauche de l'image par l'arc de cercle à $k_{SPP}/k_0=1.03$. La ligne est cette fois encore et toujours présente dans le PF avec un changement de contraste. Comme montré précédemment, cette inversion de contraste n'influence pas sur l'information extraite du plan de Fourier (cf. figure 13.7). Nous avons donc procédé à des sections le long de la direction k_y/k_0 au niveau de la présence de ces lignes.

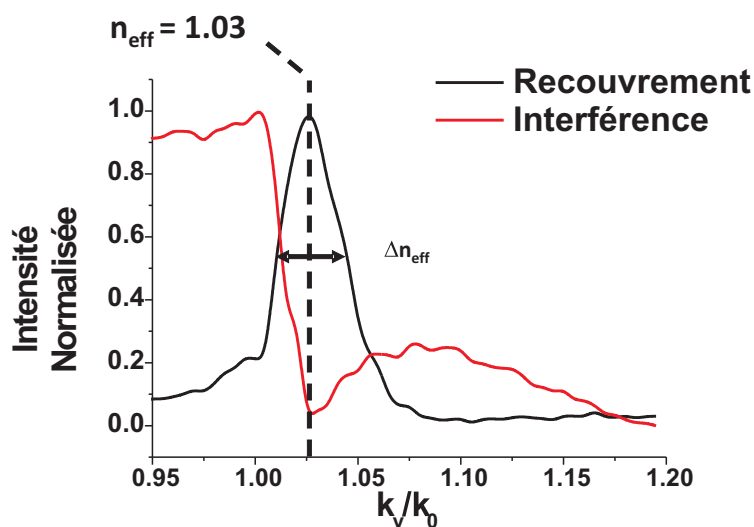


FIGURE 14.4 – Section le long de la direction k_y/k_0 sur les images 14.3.

La superposition des deux courbes sur un même graphique permet de mettre en évidence que les deux lignes sont centrées sur une même valeur d'indice effectif $k_y/k_0 = 1.03$. Cette valeur est la même que celle obtenue pour l'indice effectif du mode plasmon. Néanmoins, la largeur à mi-hauteur de ses pics est plus élevée que dans le cas du SPP ($\Delta n_{eff}^{bord} = 0.033 > \Delta n_{eff}^{SPP} = 0.0098$). D'après ces valeurs il est possible de calculer la longueur de propagation de cette intensité lumineuse sur le bord. Nous avons obtenu dans ce cas là une longueur de propagation $L_{bord}=6 \mu\text{m}$. Cette valeur est inférieure à celle du SPP de film ($L_{SPP}=14 \mu\text{m}$).

Nous pouvons conclure de ses résultats que l'intensité lumineuse confinée sur le bord de la structure est représentée dans les plans de Fourier par une ligne à $k_y/k_0=\text{cte}$. Cette signature possède les caractéristiques d'une onde évanescente unidimensionnelle (1D) (une valeur de k_y/k_0 pour un large spectre de k_x/k_0). Plusieurs hypothèses peuvent à ce stade être formulées concernant la présence de cette onde :

- excitation d'un mode particulier supporté par les arêtes.
- diffraction du plasmon sur l'arête.
- artefact de mesure ou d'excitation

L'existence de modes particuliers supportés par des arêtes métalliques a été observée théoriquement [45]. Néanmoins, l'indice effectif de ceux-ci est beaucoup plus haut que notre maximum de détection ($n_{eff} > 3$)[45, 15].

Il pourrait alors s'agir d'un artefact induit par notre système de mesure ou la méthode d'excitation. Afin d'écarter cette hypothèse, nous avons simulé la situation expérimentale présentée sur la figure 14.2 grâce à la méthode différentielle. L'exci-

tation est réalisée par un faisceau gaussien tridimensionnel placé en réflexion totale interne. La taille du faisceau focalisé est de $5 \mu\text{m}$. Les paramètres utilisés pour les calculs sont les suivants : un ruban d'or de $10 \mu\text{m}$ de large, 50 nm d'épaisseur, avec une période de $20 \mu\text{m}$. Cette valeur est assez grande pour considérer qu'il n'y ait aucun couplage entre les rubans. Le centre du faisceau focalisé est positionné à cheval sur l'arête et le substrat. Ce programme ne permet que de faire une cartographie d'intensité de champ à une altitude donnée. C'est pourquoi, pour être plus proche des images expérimentales, nous avons choisi de regarder à une altitude de 0 nm , c'est-à-dire au niveau de la surface de l'or. Le résultat obtenu avec cette simulation est présenté sur la figure 14.5(a). Afin de mieux comparer les deux résultats (expérimental et simulation) la figure 14.2 a été reproduite à côté.

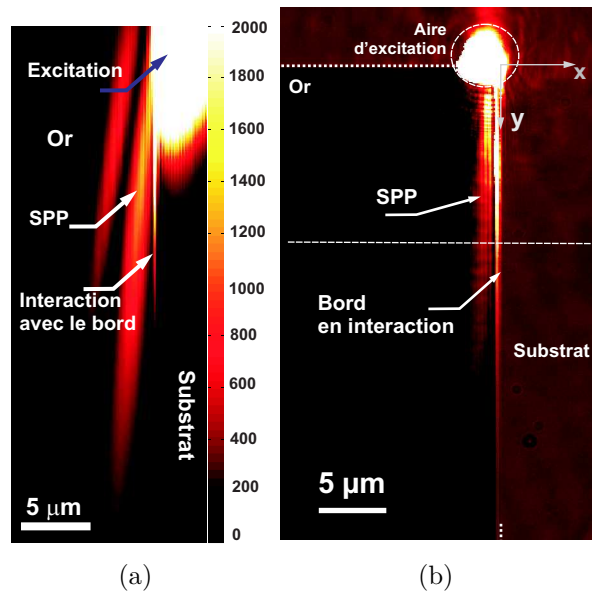


FIGURE 14.5 – (a) Intensité du champ électrique dans le plan (x, y) obtenue avec la méthode différentielle pour une situation similaire à l'image expérimentale en (b).

Ces deux images présentent plusieurs similitudes. En premier lieu, la propagation du plasmon est visible dans les deux cas sur la partie métallique. De plus celui-ci a aussi un angle qui a pour conséquence de l'éloigner du bord. Ce comportement traduit une réflexion du plasmon au niveau de la discontinuité [46]. La seconde chose intéressante est la présence de cette intensité lumineuse confinée sur l'arête. Ce résultat nous prouve donc que ce phénomène est bien réel et n'est pas un artefact. Dans la suite de l'étude nous avons cherché à déterminer les propriétés de cette onde lumineuse unidimensionnelle ainsi que l'identification du phénomène responsable de son excitation.

14.2 Influence de la polarisation incidente et analyse des composantes de l'onde 1D d'arête.

Nous savons déjà qu'il s'agit d'une onde évanescente par l'analyse des plans de Fourier. Afin de discriminer le rôle de l'excitation dans l'existence de ce phénomène, nous avons choisi d'observer l'influence de la polarisation. Pour cela nous avons enregistré la distribution d'intensité des fuites radiatives pour une excitation polarisée transverse magnétique (TM) et pour une excitation polarisée transverse électrique (TE). Ces images sont présentées sur la figure 14.6 pour une polarisation TM en (a) et une polarisation TE en (b). Les parties métalliques sont représentées par les parties sombres sur les images. Contrairement à une excitation polarisée TM, aucune intensité lumineuse n'est détectée sur l'arête pour une excitation polarisée TE. Pour confirmer cette observation, des sections suivant la direction x ont été réalisées dans les images (cf. figure 14.6 (c)). L'intensité a été normalisée par le maximum des deux courbes. En rouge est représentée la section pour une polarisation TE, et en noir pour une polarisation TM. A la différence de la courbe noire, la courbe rouge ne présente aucun pic d'intensité localisé sur l'arête ni de la signature d'un mode plasmon.

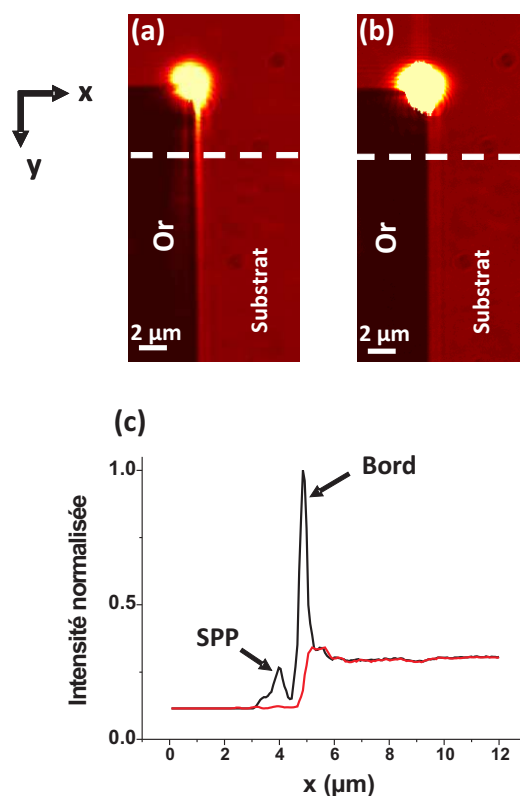


FIGURE 14.6 – Distribution d'intensité des fuites radiatives pour une excitation polarisée TM en (a) et TE en (b). (c) Section suivant la direction x au niveau des lignes en pointillés blancs.

Cette onde évanescente unidimensionnelle nécessite donc un plasmon de surface pour exister. Nous avons inséré devant la caméra CCD un analyseur afin de

déterminer si les composantes de champ de cette onde correspondent à celles attendues d'un SPP. La figure 14.7 (a) représente l'évolution de l'intensité mesurée sur l'arête métallique pour une polarisation TM en fonction de l'angle d'analyse. L'évolution de l'intensité sur l'arête se fait de façon monotone. Celle-ci est maximum lorsque le polariseur et l'analyseur sont alignés. Autrement dit, cette onde 1D possède une forte composante TM comme un SPP. Lorsque le polariseur et l'analyseur sont croisés il y a un minimum d'intensité, néanmoins celle-ci n'est pas nulle. Il reste encore $\approx 20\%$ de signal. Ceci signifie que cette onde possède aussi une faible composante TE. Sur les images 14.7 (b-c) sont représentées les distributions d'intensités pour le couple polariseur/analyseur respectivement alignés et croisés. Lorsque les deux sont alignés (cf. figure 14.7 (b)), le plasmon est visible sur le métal ainsi qu'une forte intensité sur le bord. Lorsque l'analyseur et le polariseur sont croisés, il y a une forte diminution de l'intensité sur le bord ainsi qu'une disparition totale du plasmon. Cette onde 1D contient donc à la fois des composantes TM et TE. Ce genre de caractéristiques de polarisation ressemble fortement à celles d'un mode radial cylindrique [15].

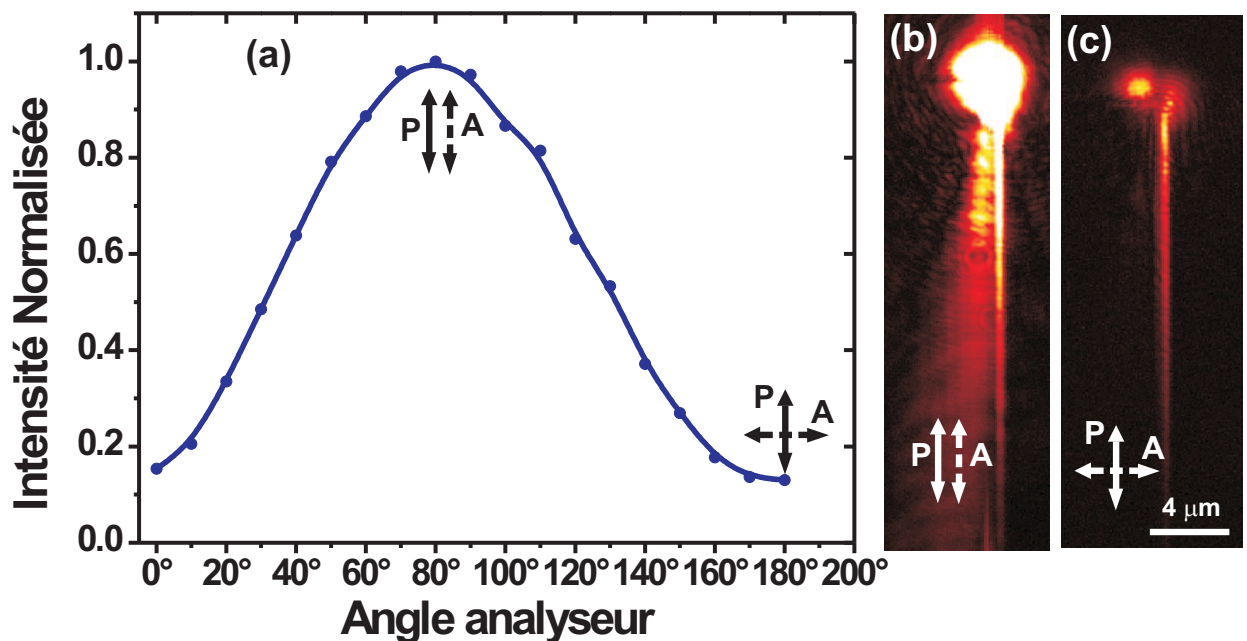


FIGURE 14.7 – Représentation graphique de l'intensité normalisée sur l'arête métallique en fonction de l'angle de l'analyseur. (b-c) Distribution d'intensité du plasmon pour deux positions spécifiques du couple polariseur/analyseur.

14.3 Structuration, influence du milieu diélectrique : quels effets sur l'onde 1D ?

Avec les résultats précédents, il nous est impossible de distinguer si cette intensité lumineuse confinée sur l'arête de la structure est due à l'excitation d'un mode propre ou à une diffraction conique du plasmon de film. Afin de discriminer qui du mode ou de la diffraction est responsable de cette onde 1D, nous avons introduit une courbure sur l'arête. S'il s'agit d'un mode d'arête, celui-ci devrait suivre la courbure, alors que le plasmon n'y sera pas sensible. Le type de structure est présenté sur la figure 14.8. Pour ne pas créer trop de pertes dans la propagation liées à la courbure, le rayon est choisi relativement faible. Les courbures ont été créées à partir d'un cercle de $23 \mu\text{m}$ de rayon et dont seulement $1/5$ de sa surface a été utilisée. Nous définissons que la courbure est qualifiée de négative lorsqu'il y a retrait de métal (à droite de l'image 14.8), et que dans l'autre cas il s'agira d'une courbure positive. Sur la courbure négative, il est clairement visible que l'arc de cercle devient lumineux, alors que pour la courbure positive ce n'est pas le cas. L'excitation dans les deux cas se fait par recouvrement de champ. La propagation du SPP est visible pour les deux cas. S'il s'agit d'un mode de bord, celui-ci ne devrait pas être influencé par le signe de la courbure. Ce résultat nous suggère que cette intensité lumineuse ne correspond pas à un mode propre de l'arête. Notre choix s'oriente sur la diffraction du plasmon.

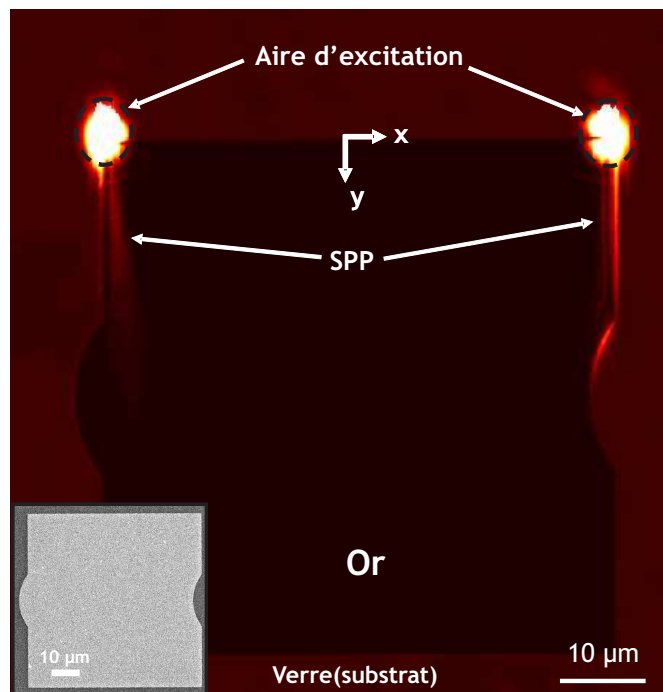


FIGURE 14.8 – Distribution d'intensité pour deux arêtes avec des courbures. Le rayon de courbure est le même pour les deux arêtes.

En considérant qu'il s'agisse bien de la diffraction du plasmon alors le schéma sur la figure 14.9 permet d'expliquer la différence entre la courbure négative et positive. En effet, lorsque la courbure est négative, une partie du plasmon va se retrouver en interaction avec la courbure (partie en pointillés verts), alors que dans le cas d'une courbure positive aucune partie du plasmon n'est en interaction avec la courbure. La partie qui est donc entourée par les pointillés verts va être diffractée par l'arête.

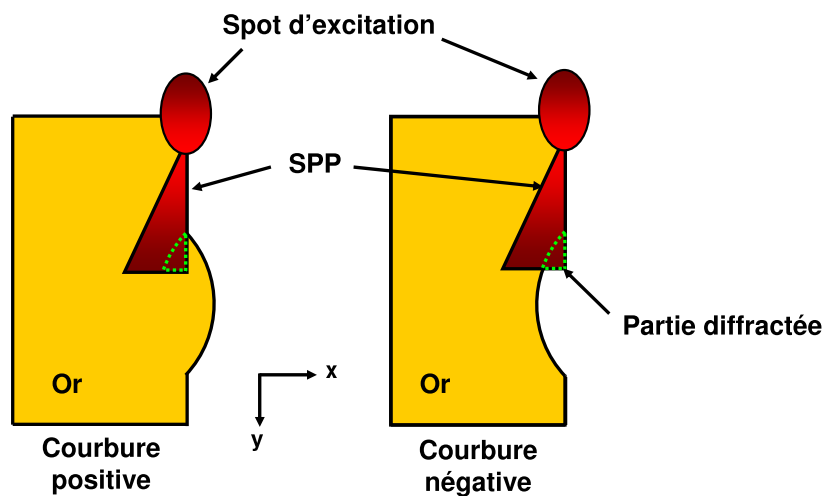


FIGURE 14.9 – Schéma permettant d'expliquer pourquoi le bord de la courbure négative est illuminé.

Si comme le montre le résultat précédent, cette concentration lumineuse sur le bord est liée au plasmon, alors le fait de modifier l'indice optique du milieu sur l'arête doit avoir une influence sur le phénomène. Les SPPs sont très sensibles à l'indice du milieu diélectrique environnant de par leur définition. Nous avons choisi dans un premier temps d'utiliser du chrome (Cr) comme masque. Celui-ci a la particularité d'inhiber un mode plasmon. Un masque de 24 nm de Cr (mesuré par AFM) a été évaporé sur les structures. L'efficacité du chrome a ensuite été vérifiée par imagerie dans l'espace réciproque. Les résultats sont présentés sur la figure 14.10. Pour cette étude avec le chrome, l'excitation a été effectuée par vecteurs d'onde résonants (contraste sombre). Ce contraste permet une meilleure identification de la présence du plasmon au centre du spot. Comme précédemment, l'excitation est réalisée en plaçant le spot à cheval sur l'arête métallique, d'où la modification de forme. Comme le montre les deux images, lorsque le Cr est présent sur l'arête, la signature du plasmon au centre du spot est absente.

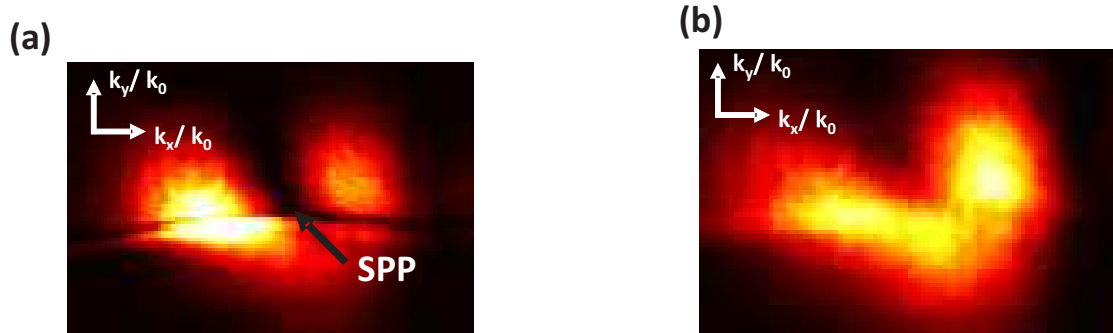


FIGURE 14.10 – (a) Zone d'intérêt du plan de Fourier d'un plasmon de surface Or/air. (b) Zone d'intérêt du plan de Fourier d'un plasmon de surface Or/Cr/air.

Pour appliquer cet effet sur l'arête, la méthode retenue consiste à recouvrir toute la partie d'or avec du chrome en ne laissant qu'une bande de largeur variable incluant l'arête à l'air libre. Les résultats dans l'espace de Fourier ainsi qu'une représentation schématique de la structure sont présentés sur la figure 14.11. La distance entre l'arête d'or et l'arête de chrome est nommée d (cf. schéma en haut de la figure 14.11). Elle varie du contact (recouvrement de l'arête métallique) jusqu'à une distance de $1 \mu\text{m}$. Pour une distance $d=0 \text{ nm}$, c'est-à-dire que la couche de chrome est au dessus de l'arête, il n'y a pas de présence de la ligne dans l'espace de Fourier. Seule est visible la diffraction du faisceau d'excitation par l'arête. Lorsque la distance d atteint 400 nm , la bande d'or est légèrement inférieure à la largeur de coupure d'un mode plasmon [21]. Sur l'image saturée correspondante, il est possible de discerner une modulation sombre dans la diffraction du faisceau. La coupe le long de la direction k_y/k_0 dans cette zone montre une faible baisse d'intensité (représentée par la flèche noire). Lorsque la largeur d continue d'augmenter, cette diminution d'intensité devient de plus en plus présente. Pour ces bandes or/air, la largeur est supérieure à la largeur de coupure d'un SPP excité à 800 nm , il est alors possible pour un plasmon or/air de se propager. Nous avons repéré que l'indice effectif pour lequel ce minimum se forme est encore une fois à l'indice effectif d'un plasmon or/air excité à 800 nm . Il est intéressant de noter que dans tous les plans de Fourier quelque soit la valeur de d comprise entre 0 et $1 \mu\text{m}$, aucune signature de plasmon n'a été observée dans le centre du spot. Ces résultats confirment que l'apparition de l'intensité lumineuse sur l'arête métallique est liée au plasmon. Celle-ci n'apparaît que lorsque la bande est suffisamment large pour autoriser la propagation d'un mode SPP.

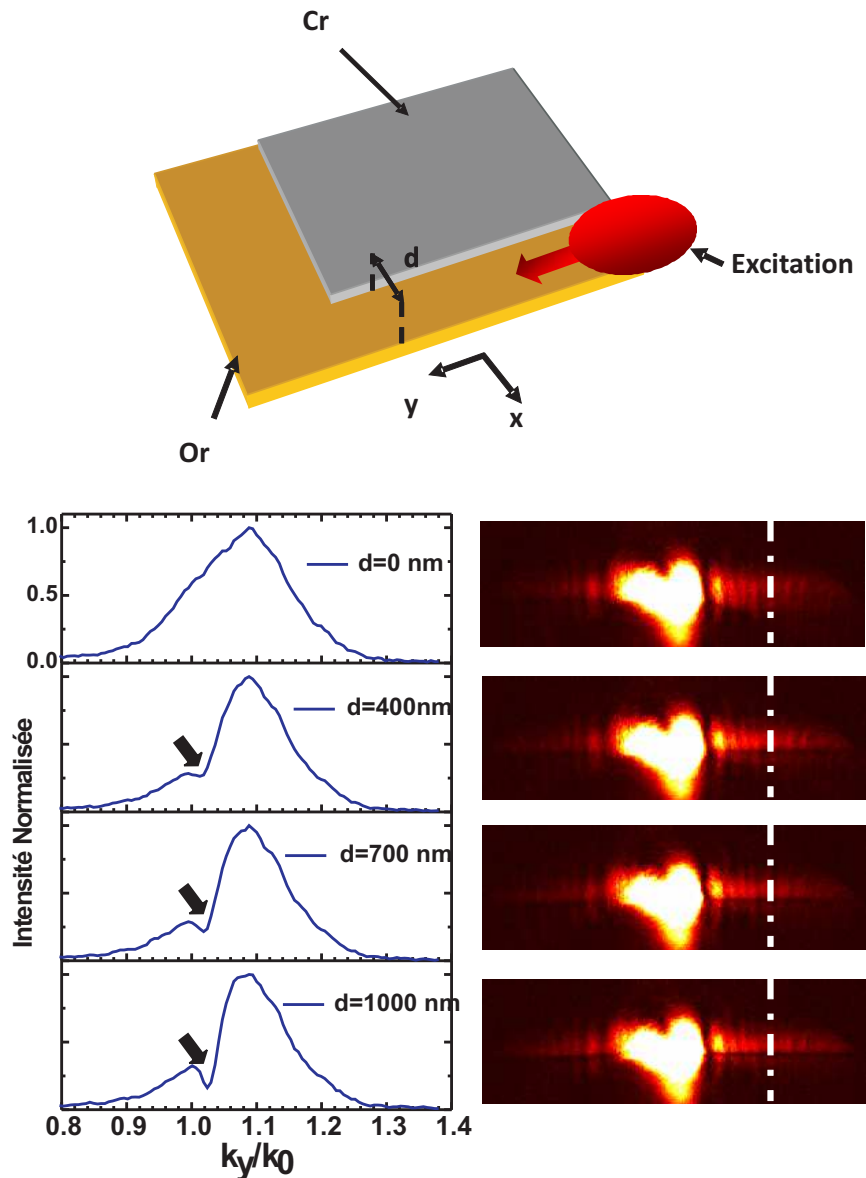


FIGURE 14.11 – Représentation graphique de coupes le long de la direction k_y/k_0 dans les plans de Fourier au niveau de la présence de la barre présentée sur la figure 14.4 pour différentes distances de retrait de la couche de chrome. A côté des coupes sont représentées les images saturées des plans de Fourier correspondant.

Cependant cette expérience nécessite son complémentaire pour valider complètement le lien avec le plasmon. C'est pourquoi le même type de structure a été réalisée, mais en remplaçant le chrome par un diélectrique (évaporation d'une couche de verre de 24 nm).

Pour cette étude, l'excitation est effectuée par le mode recouvrement de champ, le contraste sur la signature de l'interaction du SPP avec l'arête étant meilleure. L'indice effectif du mode plasmon de film n'est maintenant plus le même que dans le cas d'un système or/air. Nous avons déterminé grâce à l'imagerie dans le plan de Fourier que le mode plasmon à l'interface or/SiO₂ est tel que $n_{eff} = k_{SPP}^{or/SiO_2} / k_0 =$

1.1 alors que dans l'air il est de $k_{SPP}^{or/air}/k_0 = 1.03$). Ce décalage en indice effectif ($\Delta n_{eff}=0.7$) est suffisant pour différencier la signature des deux plasmons dans un même plan de Fourier. Dans le cas où $d=0$, c'est-à-dire que la couche de SiO_2 est superposée à l'arête métallique, la barre claire se trouve à l'indice $k_y/k_0=1.1$. Cette valeur ne va pas évoluer jusqu'à une distance de retrait de 400 nm, exactement comme le chrome. A partir de 400 nm, un pic d'intensité se forme pour des valeurs de k_y/k_0 inférieures à 1.1. Comme le montre l'image du plan de Fourier saturée à côté, il y a bien une barre bien définie ainsi que l'apparition d'une seconde signature juste en dessous. A partir de $d=700$ nm, il y a deux pics de même amplitude (cf. image 14.12 $d=700$ nm). L'un est à l'indice $k_y/k_0=1.1$, et le second est à un indice plus faible proche de la valeur $k_y/k_0=1.04$. La largeur de la bande or/air est au dessus de la largeur de coupure. Il est donc possible d'exciter et de propager un mode plasmon or/air. En continuant d'augmenter la distance de retrait jusqu'à atteindre la valeur de 1 μm , il ne reste plus que la présence d'une unique ligne à l'indice effectif $k_y/k_0=1.04$. Le comportement avec le SiO_2 ressemble fortement à celui observé avec le chrome. La présence d'une ligne dans les plans de Fourier n'est possible qu'au delà d'une valeur de retrait de 400 nm. Cette limite est aussi la limite définie comme la largeur de coupure d'un mode plasmon se propageant à l'interface or/air sur une largeur de métal finie. Autrement dit la ligne présente dans les plans Fourier telle que $k_y/k_0=\text{cte}$ quelque soit k_x/k_0 n'est autre que la diffraction du plasmon sur l'arête métallique. Contrairement au chrome, avec le SiO_2 il est possible d'exciter un plasmon dans le reste du film métallique (cf. image 14.12). La présence de l'arc de cercle est visible sur les images des plans de Fourier. Il se trouve que celle-ci se situe en permanence à l'indice effectif d'un plasmon excité sur une interface or/ SiO_2 , c'est-à-dire $k_{SPP}/k_0=1.1$. Comme il est possible de l'observer sur les plans de Fourier présentés dans l'image 14.12 pour les distances de 700 nm et 1 μm , l'arc de cercle correspondant à la signature du plasmon se propageant dans le film métallique, est à une valeur supérieure de la ligne centrée à $k_y/k_0=1.04$. Ce résultat montre bien la propagation de deux plasmons.

Pour confirmer ce résultat, nous avons réalisé la configuration inverse, c'est-à-dire que nous avons seulement recouvert l'arête avec une bande de SiO_2 et laissé le reste du rectangle à l'air. Si comme nous le pensons il s'agit de la diffraction du plasmon alors l'indice de la barre doit être à l'indice effectif du mode plasmon or/air et non à celui du SiO_2 . Le résultat est présenté sur la figure 14.12 avec la courbe en rouge. Comme nous l'avions anticipé, la barre se trouve à l'indice effectif d'un plasmon or/air. Contrairement à la configuration précédente, l'arc de cercle plasmon dans ce cas là est bien tangent à la ligne $k_y/k_0=1.04$. Il ne s'agit donc pas d'un mode mais bien de la diffraction du plasmon par l'arête métallique.

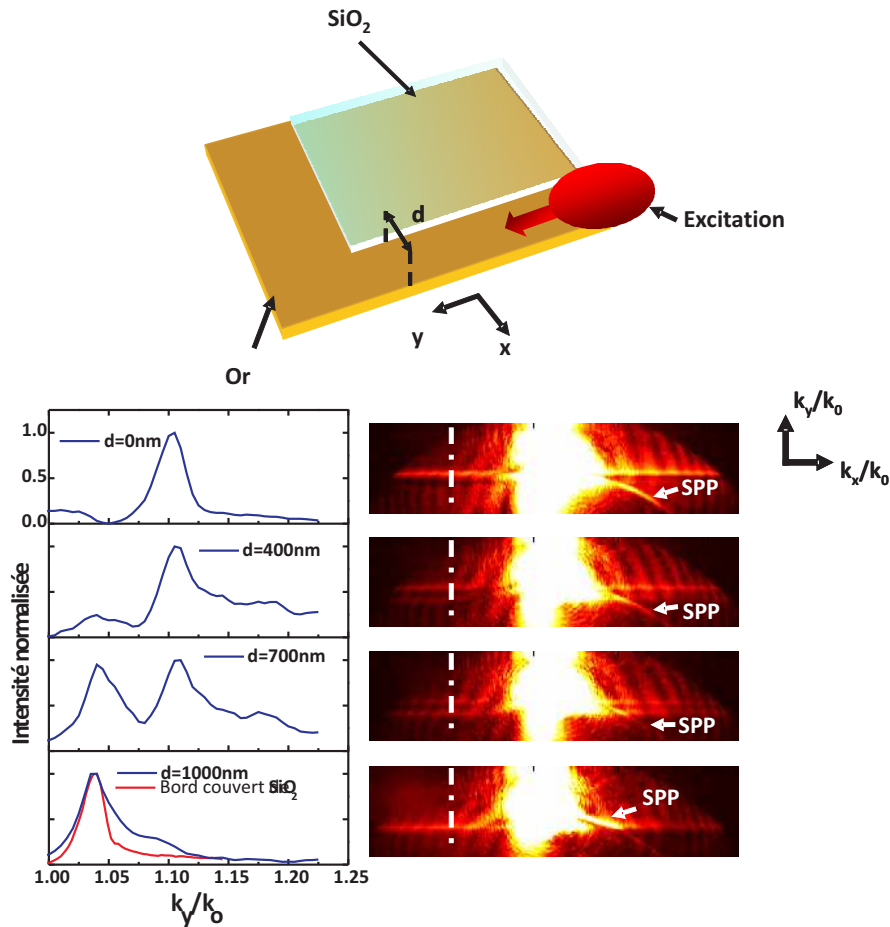


FIGURE 14.12 – Représentation graphique de coupes le long de la direction k_y/k_0 dans les plans de Fourier au niveau de la présence de la barre présentée sur la figure 14.4 pour différentes distances de retrait de la couche de SiO_2 . A coté des coupes sont représentées les images saturées des plans de Fourier correspondant.

Comment expliquer qu'à une certaine distance d l'arête diffracte deux vecteurs d'ondes plasmons? L'explication est représentée de façon schématique sur la figure 14.13. Lorsque la distance de retrait de la couche de SiO_2 est nulle, un seul mode plasmon peut exister et se propager. Il s'agit d'un plasmon de surface à l'interface or/ SiO_2 . Lorsque la distance de retrait augmente jusqu'à une valeur proche de 400 nm, les relations de continuités aux interfaces entraînent la conservation du vecteur d'onde parallèle. Le plasmon se propageant à l'interface or/ SiO_2 voit donc l'amplitude de son vecteur d'onde décroître de manière exponentielle dans l'air (conservation du vecteur parallèle à l'interface, dans notre cas k_{SPP}). Néanmoins, la distance entre le bord de la couche de SiO_2 et l'arête métallique est inférieure à la décroissance exponentielle du mode. Autrement dit, son amplitude n'est pas à nulle lorsqu'il rencontre l'arête métallique. Ceci permet d'expliquer la présence de la ligne à l'indice effectif $n_{eff}=1.1$. Dans le même temps, la largeur de la bande or/air est inférieure à la largeur de coupure [21]. Cette limitation implique qu'aucun plasmon or/air ne peut s'y propager. Lorsque la distance de retrait dépasse cette limitation, il est possible d'avoir un plasmon or/air qui se propage sur la bande d'or. Tant que la

distance de retrait n'est pas suffisante par rapport à l'atténuation du mode plasmon or/SiO₂ celui-ci continuera donc de diffracter sur l'arête métallique. C'est pourquoi il est possible d'avoir deux lignes dans les plans de Fourier, signature caractéristique de la diffraction du vecteur d'onde plasmon sur l'arête. Finalement, pour une distance de l'ordre de 1 μm, le vecteur d'onde du plasmon se propageant à l'interface or/SiO₂ s'est complètement atténué avant de rencontrer l'arête métallique. Ceci marquera donc son absence dans les plans de Fourier. Cependant, la largeur de la bande d'or à l'air libre autorise qu'un plasmon or/air s'y propage, c'est pourquoi il y aura une ligne dans le plan de Fourier à l'indice effectif d'un plasmon or/air.

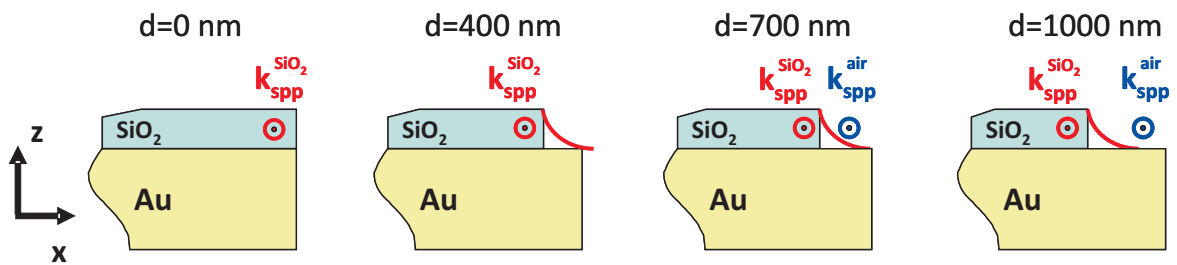


FIGURE 14.13 – Schéma explicatif de la diffraction du plasmon sur une arête et de la présence de plusieurs lignes dans les plans de Fourier.

14.4 Confirmation de la diffraction du plasmon en une onde unidimensionnelle

Afin de confirmer qu'il s'agisse bien du plasmon qui se diffracte sur une arête, nous nous avons mesuré l'intensité diffractée à la fois par l'onde confinée sur le bord et le plasmon de film. Pour mesurer cette intensité diffractée, un bord perpendiculaire à l'axe de propagation a été inséré. Nous avons ensuite mesuré l'intensité diffusée en fonction d'une distance l . Cette variable représente la distance entre le centre de spot d'excitation et l'arête perpendiculaire à la propagation. Pour réaliser ces mesures, l'échantillon a été déplacé suivant la direction y . La situation expérimentale est présentée sur l'image en haut de la figure 14.14. Les bords métalliques sont repérés par les pointillés blancs. L'intensité diffusée par l'arête métallique est donc toujours mesurée pour $x=0$. Pour ce qui est du plasmon, la mesure de son intensité diffusée sur le bord perpendiculaire est toujours mesurée au milieu de la zone de diffusion. Celle-ci va changer de taille au fur et à mesure de l'expérience. Plus la distance l va devenir faible, moins la zone de diffusion du plasmon sera étendue. Ceci est lié à la divergence naturelle d'un mode plasmon de surface. Les points en rouges sur le graphique représentent donc l'intensité diffusée pour l'arête en fonction de l , alors que les points en bleus représentent celle du plasmon (cf. figure 14.14). Dans tous les cas, l'intensité diffusée par le plasmon est nettement supérieure à celle du bord. En réalisant un ajustement de courbe de type exponentielle décroissante sur ses points, il est possible de remonter aux longueurs de propagation de l'onde 1D et de celle du plasmon. Pour le plasmon nous avons obtenu une valeur de $L_{SPP}=28 \mu\text{m}$, et pour le bord $L_{bord}=16 \mu\text{m}$. Ces valeurs sont au moins deux fois plus grandes que celles

trouvées jusqu'à présent. Comme il s'agit d'un échantillon différent nous expliquons cette différence par le fait que l'épaisseur d'or est plus importante, augmentant du même coup la longueur de propagation [36].

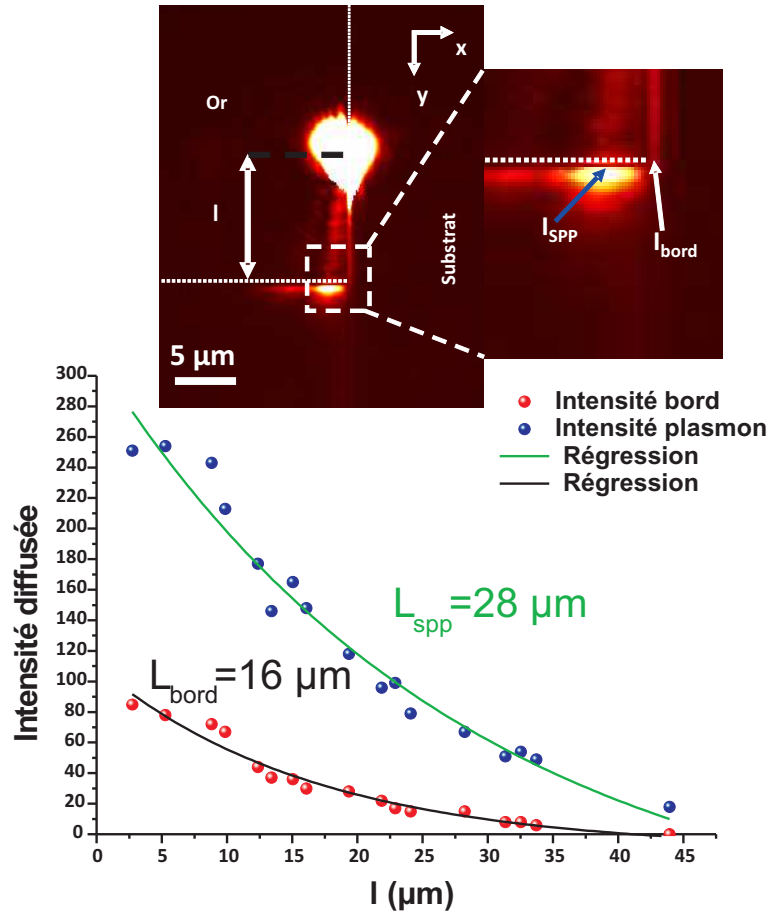


FIGURE 14.14 – Représentation graphique de l'intensité diffusée par le plasmon et le bord en fonction de la distance. En haut du graphique est représentée une image expérimentale pour présenter la situation. La propagation est suivant la direction y . La distance l correspond à la distance entre le bord perpendiculaire à la propagation et le centre du spot.

Le plasmon lorsqu'il interagit avec l'arête se transforme donc en une onde unidimensionnelle, autrement dit le plasmon subit une réduction dimensionnelle. Contrairement à ce qu'argumente R. Zia [21], le plasmon lorsqu'il rencontre une arête métallique n'est pas tout simplement transmis ou réfléchi en fonction de l'angle avec lequel il arrive sur celle-ci. Il s'agit d'une transformation du SPP en une onde évanescente unidimensionnelle. La détection de celle-ci est possible grâce à la présence du substrat qui fruste cette onde.

Nous nous sommes donc interrogé sur les propriétés d'une telle conversion. Pour répondre à cette question, nous avons vérifié l'influence de l'interaction entre le plasmon et l'arête en déplaçant le faisceau d'excitation suivant la direction x . Des images expérimentales sont présentées sur la figure 14.15 pour quatre positions de Δx différentes. Nous le définissons comme étant la différence entre la position du

spot et celle de l'arête. Lorsque $\Delta x < 0$ alors le spot se trouve dans le métal. La position nulle est donc par définition celle où le centre du spot d'excitation coïncide avec l'arête. A cette position, l'intensité lumineuse est visible sur l'arête. Sa propagation est cependant très courte. Lorsque le spot laser s'éloigne de l'arête, l'illumination de l'arête semble être plus étendue. Puis à partir de $\Delta x = -3.8 \mu\text{m}$, le début d'illumination du bord n'est plus lié au coin de la structure. En éloignant encore d'avantage l'excitation, l'écart entre la position où le bord commence à s'illuminer et le coin s'agrandit. De plus, en regardant l'intensité du plasmon se propageant sur la partie métallique, il est clair que c'est lorsque celui-ci rencontre l'arête que celle-ci s'illumine.

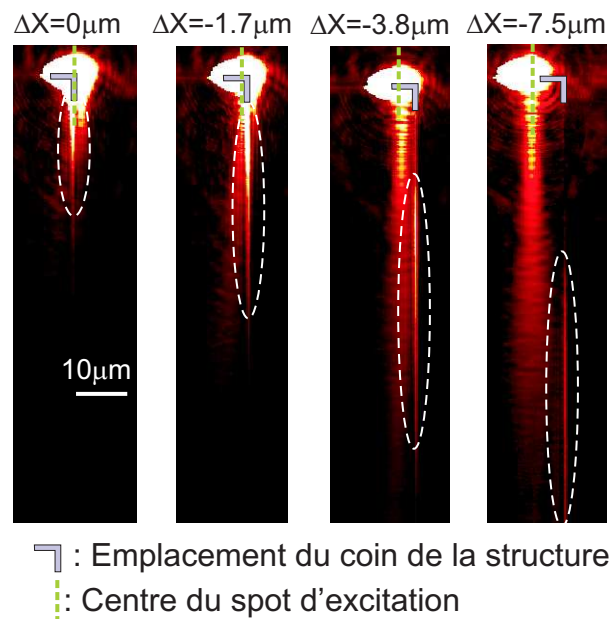


FIGURE 14.15 – Distribution d'intensité en fonction de la position $\Delta x = x_{edge} - x_{spot}$ pour quatre positions.

Après avoir observé cette modification dans les plans images, nous nous sommes intéressés aux plans de Fourier. Sur la figure 14.16 sont représentées des sections suivant la direction k_y/k_0 au niveau de la signature de l'onde 1D pour différentes valeurs de Δx . Lorsque la valeur de Δx est nulle, la ligne claire dans les plans de Fourier est très large. De plus son maximum se situe à $k_y/k_0 = 1.044$. La valeur du plasmon de film pour cet échantillon se situe à $k_{SPP}/k_0 = 1.03$. La valeur n'est sensiblement pas la même pour les deux signatures. Lorsque le spot est éloigné de l'arête ($\Delta x < 0$), plusieurs phénomènes se produisent. Tout d'abord jusqu'à la valeur de $\Delta x = -3.8 \mu\text{m}$, il y a un affinement de la largeur de la ligne, tout en conservant le maximum centré sur la valeur $k_y/k_0 = 1.044$. Lorsque Δx continue de diminuer, cette fois c'est la valeur du pic qui se décale tout en conservant la même largeur. Celui-ci se déplace vers des valeurs plus faibles de k_y/k_0 . Finalement pour la valeur de $\Delta x = -9.2 \mu\text{m}$, l'indice de la ligne dans les plans de Fourier a exactement le même indice que celui du mode plasmon dans le film, c'est-à-dire $k_y/k_0 = 1.03$.

Pour des soucis de représentation, l'intensité de la ligne a été normalisée pour chaque coupe par rapport à son maximum. Sur la droite des courbes sont reportés les

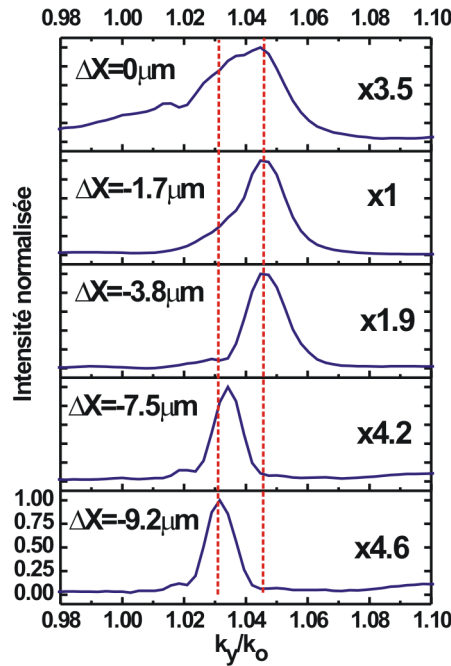


FIGURE 14.16 – Section au niveau de la signature de l’arête dans les plans de Fourier suivant la direction k_y/k_0 pour différents déplacements latéraux du spot.

facteurs d’atténuation de l’amplitude par rapport à la distance Δx . Plus la valeur $|\Delta x|$ devient grande, moins l’interaction plasmon/arête est importante. De ce fait la conversion en onde 1D devient moins importante. L’intensité de la signature de cette interaction dans les plans de Fourier devient donc moins intense. C’est ce que montre les facteurs multiplicatifs reportés à droite des courbes.

Comment expliquer le comportement de cette ligne, c’est-à-dire la réduction de sa largeur puis le changement d’indice effectif en fonction de la distance d’interaction? L’explication peut être obtenue à partir de la signature dans le plan de Fourier d’un plasmon sur un film étendu (cf. figure 14.17). Nous définissons pour cela deux grandeurs. La première est reliée à la largeur à mi-hauteur de la signature du plasmon dans l’espace de Fourier. Comme décrit plus haut dans cette partie, la signature d’un plasmon de surface est une Lorentzienne, et sa largeur à mi-hauteur est directement reliée à la longueur de propagation. Nous avons dénommé cette valeur Δn_{eff} . L’échantillon utilisé précédemment nous a donné comme valeur pour le plasmon $\Delta n_{eff} = 0.01$, ce qui donne une longueur de propagation $L_{SPP} = 11.3 \mu\text{m}$. De la même façon cette information peut être obtenue par les plans images. Pour cela il suffit de réaliser une section sur le plasmon et de réaliser un ajustement avec une exponentielle décroissante pour remonter à la longueur de propagation. Dans ce cas nous avons obtenu une longueur de propagation du plasmon de $L_{SPP} = 11.7 \pm 0.5 \mu\text{m}$. Les deux valeurs sont cohérentes.

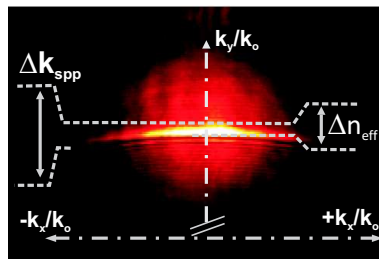


FIGURE 14.17 – Zone d'intérêt du plan de Fourier d'un plasmon de surface sur un film étendu. La largeur à mi hauteur de la signature du plasmon suivant la direction k_y/k_0 est appelée Δn_{eff} . La dispersion angulaire du plasmon est définie par la grandeur Δk_{SPP} .

La seconde grandeur quant à elle est liée à la dispersion angulaire du plasmon. Nous la nommons Δk_{SPP} . Pour un plasmon se propageant sur un film étendu, cette valeur vaut $\Delta k_{SPP} = 0.036$ et est liée à la distribution des vecteurs d'ondes incidents. Nous avons donc reporté sur la figure 14.18, la mesure des largeurs à mi-hauteur en fonction de la valeur de Δx pour les coupes de la figure 14.17. Comme le montre le graphique, lorsque la valeur $\Delta x = 0 \mu\text{m}$ la largeur à mi-hauteur ($\Delta k_y/k_0$) de la ligne est la plus importante. Sa valeur est proche de la valeur de Δk_{SPP} . Lorsque la valeur de Δx est diminuée, $\Delta k_y/k_0$ diminue elle aussi jusqu'à la valeur de $\Delta n_{eff} = 0.0093$. Cette valeur se trouve cette fois proche de Δn_{eff} . Autrement dit lorsque le faisceau d'excitation est à cheval sur l'arête, toutes les projections du vecteur d'onde plasmon suivant l'axe k_y/k_0 diffractent sur l'arête. A partir du moment où l'excitation est éloignée du bord, seules certaines projections du vecteur d'onde plasmon interagissent avec l'arête, d'où le déplacement de l'indice de la ligne et la réduction de sa largeur.

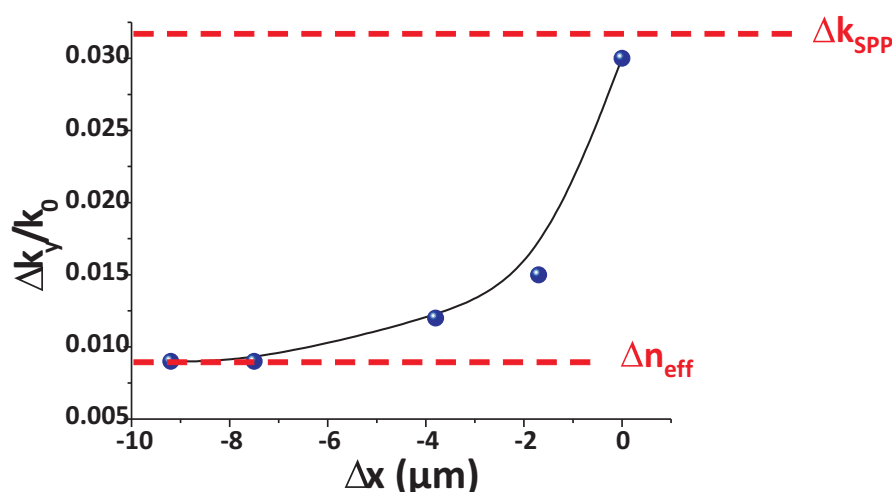


FIGURE 14.18 – Graphique représentant l'évolution de la largeur à mi-hauteur des coupes de la figure 14.17 en fonction de Δx .

Cette signature d'onde évanescente unidimensionnelle est donc une conséquence de la diffraction du plasmon sur une arête métallique. Il s'agit donc d'une transformation d'un plasmon bidimensionnel en un plasmon unidimensionnel. La largeur

ainsi que l'intensité de ce plasmon 1D sont directement reliés aux vecteurs d'ondes contenus dans le SPP diffractant sur l'arête (dispersion angulaire).

Chapitre 15

Etude de la propagation d'un plasmon de surface dans des guides rubans métalliques

Sommaire

15.1 Origine de la largeur de coupure dans les guides rubans.	144
15.2 Focalisation d'un plasmon de surface . .	149

Nous nous sommes pour l'instant uniquement intéressés au cas où le plasmon n'interagissait qu'avec une seule arête. Il a été mis en évidence que le résultat de cette interaction conduisait à la transformation du plasmon en une onde unidimensionnelle confinée sur l'arête métallique de la structure. De plus, cette conversion dépend fortement de la distance latérale entre l'arête et le plasmon. Dans le cas d'un guide métallique de largeur finie, la propagation d'un mode plasmon est affectée par la taille du guide [20, 21, 47]. Ces auteurs ont montré l'existence d'une largeur de coupure pour laquelle les plasmons de surface ne peuvent se propager. Jusqu'à maintenant, l'existence de cette largeur de coupure était expliquée à partir d'un modèle consistant avec les trajets lumineux en optique géométrique [21, 46]. Ce modèle applique la loi de réflexion totale interne aux plasmons incidents sur une discontinuité métallique. Seuls ceux possédant un angle d'incidence supérieur à l'angle critique seront réfléchis, les autres seront transmis dans le superstrat.

Dans ce chapitre, nous allons montrer expérimentalement que la largeur de coupure des modes plasmons résulte de la diffraction de ces derniers par les limites physiques du guide.

15.1 Origine de la largeur de coupure dans les guides rubans.

Nous avons choisis de réaliser des guides plasmoniques dont la largeur varie de $4\ \mu\text{m}$ à $0.5\ \mu\text{m}$ avec un pas de $0.5\ \mu\text{m}$. La longueur pour tous les guides est fixée à $23\ \mu\text{m}$. Afin d'exciter correctement le plasmon, un réservoir métallique de $50\ \mu\text{m} \times 120\ \mu\text{m}$ est ajouté à l'entrée des guides (cf. figure 15.1).

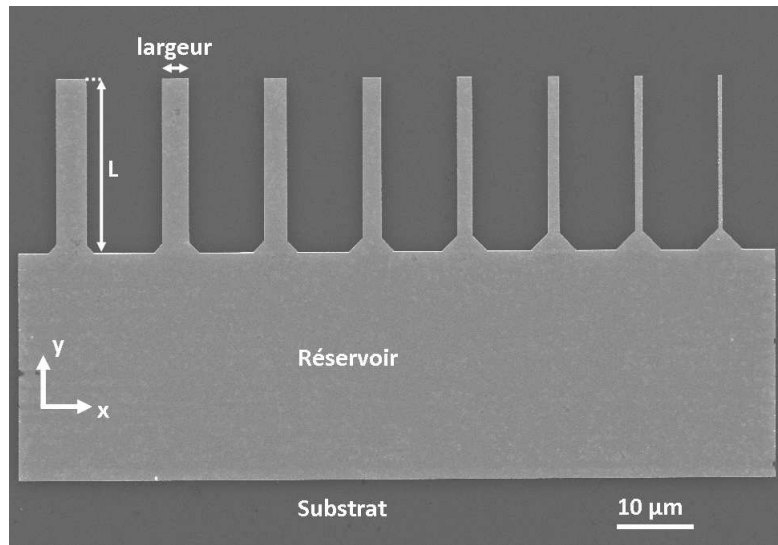


FIGURE 15.1 – Image par microscopie électronique à balayage de la structure utilisée.

Les précédentes études expérimentales sur des guides rubans ont été réalisées grâce à une détection en champ proche [18, 21]. Nous utilisons pour cette section toujours le microscope à fuites radiatives présenté précédemment (cf. section 13). Contrairement aux autres études effectuées en champ proche, nous avons avec notre système à la fois une information sur l'intensité mais aussi sur les vecteurs d'ondes. Cet ajout d'information nous a notamment permis dans le cas de la section précédente d'analyser finement l'interaction entre un plasmon et une arête métallique.

Sur la figure 15.2 (a) est représentée une image des fuites radiatives d'un plasmon de surface se propageant sur un guide de $1\ \mu\text{m}$ de large. Les limites du guide ainsi que celles du réservoir sont représentées à l'aide de lignes en pointillés blancs. L'excitation est contenue dans un spot de $5\ \mu\text{m}$ de large. La propagation du plasmon se fait suivant la direction y . Les bords du guide présentent une forte intensité lumineuse comme présenté sur l'image 14.2. Une coupe suivant la direction x a été réalisée sur cette image au niveau de la ligne en pointillés blancs larges (distance environ $12\ \mu\text{m}$ de l'excitation) et est représentée sur la figure 15.2 (b). Les pics d'intensité sont localisés sur les arêtes du guide. Le plasmon dans le cas d'un guide de $1\ \mu\text{m}$ ne se propage qu'à une distance de $L_{SPP} \approx 6\ \mu\text{m}$ [21, 47], celui-ci est donc intégralement converti en onde 1D à la distance de la coupe. Contrairement aux images obtenues par les microscopes en champ proche, les bords du guide sont illuminés [20, 21]. Il semblerait que la microscopie par fuite radiative soit plus efficace pour la détection de cette conversion en onde évanescence unidimensionnelle.

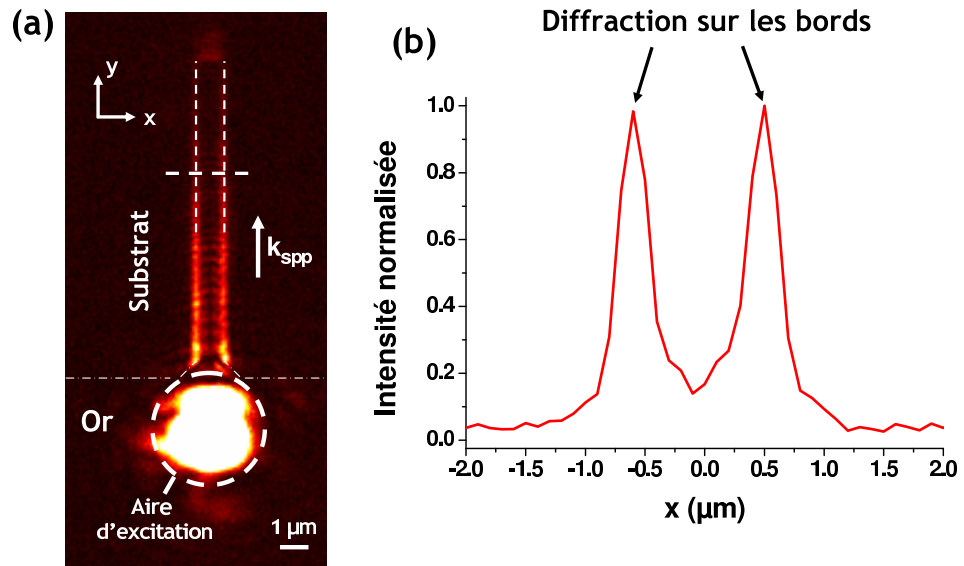


FIGURE 15.2 – (a) Image d'un guide métallique de 1 micron de large obtenu par microscopie à fuite radiative. (b) Coupe le long de la direction x dans au niveau de la ligne en tirets blanc dans (a).

Pourquoi la microscopie à fuites radiatives permet elle la visualisation de cette transformation du plasmon et non la microscopie en champ proche ? Cette dernière est pourtant parfaitement étudiée pour caractériser les ondes évanescentes. La réponse va nous être fournie par des simulations numériques. En utilisant la méthode différentielle, mais cette fois en réalisant l'étude sur un guide de $2 \mu\text{m}$ de large. Nous avons simulé la cartographie d'intensité d'un plasmon de surface or/air dans le plan (x, y) pour différentes altitudes d'observation. Nous avons représenté sur la figure 15.3 deux sections suivant la direction x effectuées à $y=12 \mu\text{m}$ de l'excitation pour une altitude de 50 nm et une autre de 5 nm.

Le guide commence à $x=-1 \mu\text{m}$ et fini à $x=1 \mu\text{m}$ (trait en tirets noirs). Le fort pic d'intensité au centre du guide est dû au plasmon de surface. Cette intensité est plus grande lorsque l'altitude d'observation est proche de la surface métallique. Pour l'altitude de 5 nm, un pic de faible amplitude est présent à $|x|=1 \mu\text{m}$ correspondant à l'interaction du plasmon avec l'arête métallique. En regardant sur l'arête pour une altitude de 50 nm, cet effet n'est plus visible. Concernant les caractérisations champ proche de R. Zia et J.-C. Weeber [18, 21], la collection de l'intensité du champ évanescent est effectuée à une altitude supérieure ou égale à 100 nm. D'après les résultats des simulations, pour une altitude de 50 nm il n'est déjà plus possible de détecter la surintensité sur le bord, c'est pourquoi celle-ci n'est pas visible sur les images champ proche. En plus de leur altitude de collection très élevée, il faut aussi prendre en compte que l'intensité du plasmon à l'interface or/air est dans tous les cas nettement supérieure à l'intensité diffractée par les bords (80% d'atténuation). Le fait que la microscopie à fuites radiatives soit plus sensible à ce phénomène montre seulement que les bords sont un canal de pertes privilégié dans le substrat.

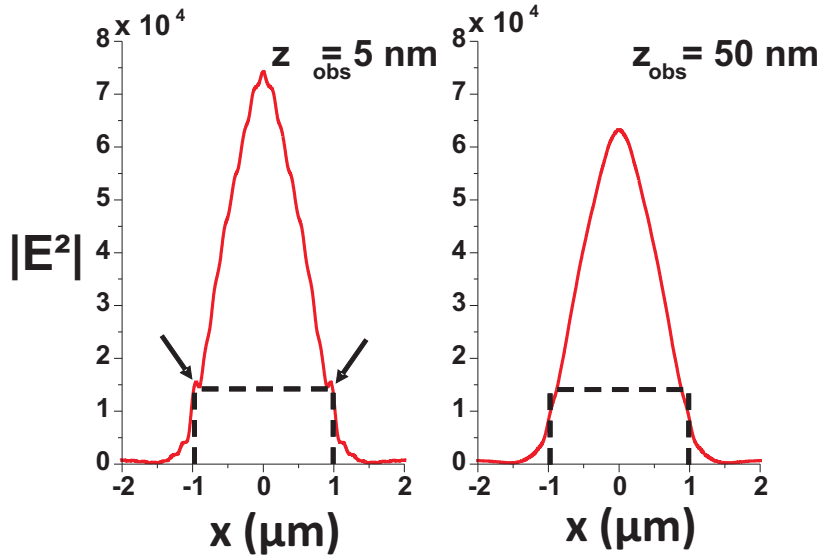


FIGURE 15.3 – Représentation graphique de $|E|^2$ le long de la direction x à $12 \mu\text{m}$ de l'excitation pour un guide de $2 \mu\text{m}$ de large pour une altitude de 50 nm et 5 nm .

La figure 15.4 présente l'image obtenue dans l'espace réciproque pour la situation sur la figure 15.2 (a). La signature du plasmon de surface est présente en contraste sombre au milieu du spot. Dans cette configuration le faisceau d'excitation est focalisé sur une surface métallique. Dans ce cas là, il y a une interférence destructive entre le faisceau réfléchi et les pertes radiatives du plasmon. La valeur du vecteur d'onde du plasmon est de $k_{SPP}=1.04 k_0$ pour cet échantillon. La signature caractéristique de la diffraction du plasmon par les bords est présente dans le plan de Fourier. Celle-ci apparaît en contraste clair malgré l'excitation choisie. Cette fois, le spot d'excitation ne subit pas de diffraction par l'arête, puisqu'il est dans le réservoir. Les vecteurs d'onde contenus dans l'aire d'excitation ne contiennent pas les vecteurs permettant l'expression de l'onde 1D, il ne peut donc pas y avoir d'interférences destructives.

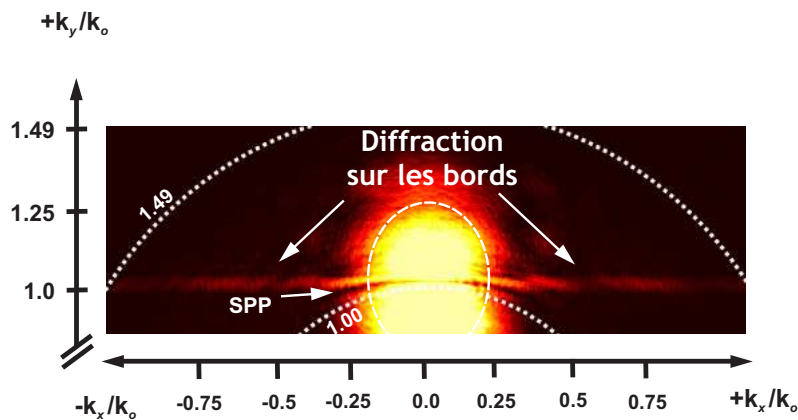


FIGURE 15.4 – Plan de Fourier de la situation présentée sur la figure 15.2 (a).

Étant donné la sensibilité de la microscopie à fuites radiatives pour ce phénomène, nous avons cherché à évaluer le rôle de cette interaction arête/plasmon sur l'existence de la largeur de coupure dans les guides métalliques de largeur finie. Tel que le montre

la figure 15.5, les coupes effectuées suivant la direction x à $y=12 \mu\text{m}$, sont différentes en fonction de la largeur du guide considéré. Les pointillés noirs symbolisent les limites du guide. Pour le guide le plus large la coupe met en valeur la présence de trois pics. Le plus intense est associé au plasmon de surface, tandis que les deux autres correspondent à la diffraction sur les bords. Lorsque la taille du guide diminue, le pic d'intensité au centre (plasmon) diminue en amplitude jusqu'à totalement disparaître comme le montre la coupe pour le guide de $0.5 \mu\text{m}$. Les pics d'intensités présents sur les bords vont suivre une évolution contraire. Lorsque la largeur va diminuer, ceux-ci vont devenir de plus en plus intenses. Ce comportement révèle que plus la largeur du guide diminue, plus le plasmon sera converti en onde unidimensionnelle. Une réduction de la largeur du guide, implique une augmentation du confinement du mode et donc une plus forte interaction avec les bords.

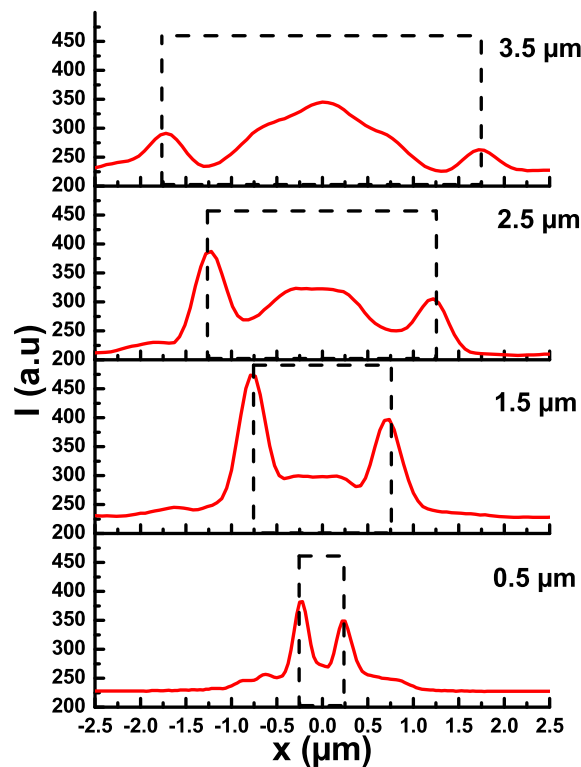


FIGURE 15.5 – Représentation graphique des coupes effectuées suivant la direction x à $y=12 \mu\text{m}$, pour différentes largeurs de guide. Les pointillés en noirs représentent les bords du guide.

Nous avons voulu vérifier ce comportement par le biais de simulations numériques. Pour cela nous avons eu recours à un logiciel commercial basé sur la méthode des éléments finis. Cette méthode permet d'obtenir un résultat beaucoup plus rapidement qu'avec la méthode différentielle. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 15.6. Toutes les images ont été saturées avec la même valeur d'échelle. A gauche est représenté une image entière du guide dans le plan (x, z) , et

à droite de chaque image est représenté un zoom du coin gauche du guide. Le comportement obtenu avec ses simulations est typiquement le même que celui mesuré dans les plans images expérimentaux. Pour le guide de $4 \mu\text{m}$, le coin de la structure présente une faible intensité diffractée. Lorsque la largeur diminue, cette intensité augmente au même titre que pour les images expérimentales.

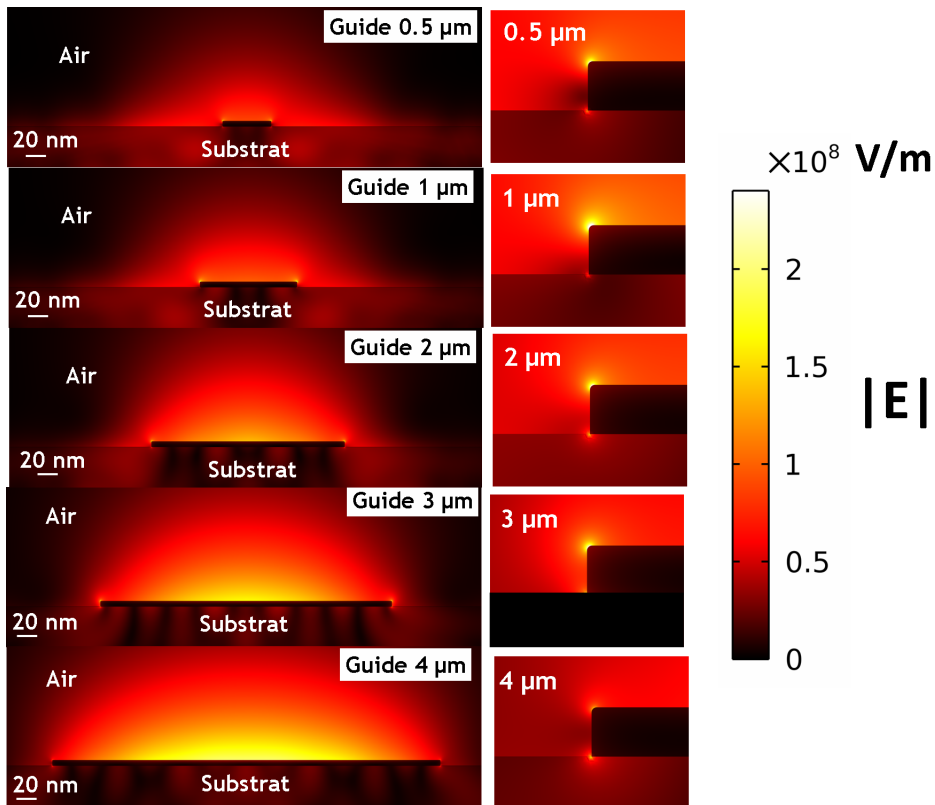


FIGURE 15.6 – Images calculées de la norme du champ électrique pour différentes largeurs de guide.

Nous avons étudié l'évolution de l'intensité de la ligne clair dans les plans de Fourier en fonction de la largeur du guide. De par la signature du mode plasmon présente au centre de l'aire d'excitation, il a été possible de mesurer la longueur de propagation pour chaque largeur de guide. L'évolution de ces deux grandeurs est retranscrite sur le graphique dans la figure 15.7. La longueur de propagation du mode plasmon est représentée par une ligne avec des points bleus, alors que l'intensité de l'onde 1D est elle représentée par une ligne noire avec des points rouges. Sur ce graphique a été ajouté l'intensité intégrée sur les coins (zone de $24 \text{ nm} \times 24 \text{ nm}$) issue des simulations numériques (anneaux verts). Afin de faire correspondre les échelles, les deux intensités (expérimentale et simulation) ont été normalisée par rapport à leurs maximums respectifs.

Lorsque la largeur du guide est la plus grande possible (dans notre cas $4 \mu\text{m}$), la longueur de propagation est maximum alors que l'intensité (simulation et expérience) présente sur l'arête est minimum. Lorsque la largeur du guide diminue, la longueur de propagation du mode plasmon décroît, alors que l'intensité sur l'arête croît. Le maximum pour l'intensité présente sur l'arête est obtenu pour le guide de $1 \mu\text{m}$. Le

fait que cette valeur diminue ensuite est lié au fait que le mode plasmon se propage de moins en moins. L'onde unidimensionnelle voit donc dans ce cas sa longueur d'interaction diminuée. Le fait que ces deux courbes (L_{SPP} et I) aient une évolution inversée en fonction de la largeur du guide métallique montre bien que la largeur de coupure est liée à la conversion du plasmon en une onde 1D par les bords. Ceci est la preuve expérimentale que la largeur de coupure est en fait due à une conversion du plasmon par les bords.

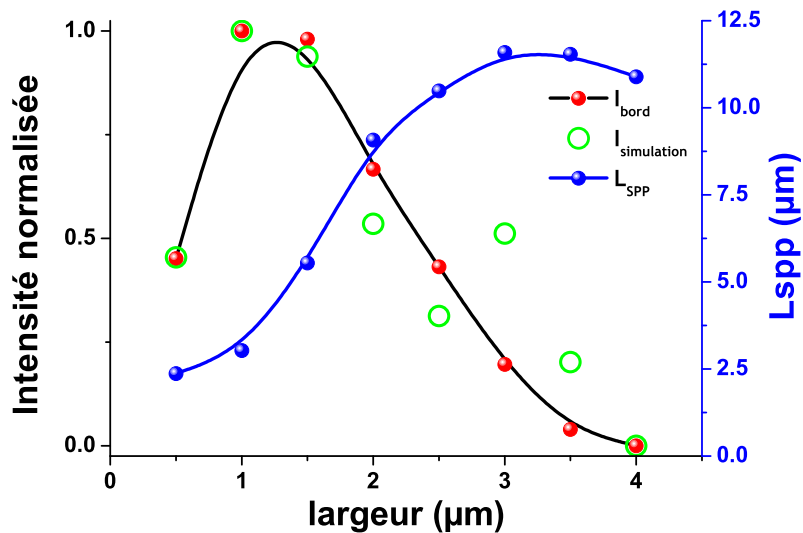


FIGURE 15.7 – Représentation graphique de l'intensité de la barre claire dans le plan de Fourier en fonction de la largeur de guide (courbe en noir avec point rouge), comparée à la longueur de propagation du plasmon en fonction de la largeur de guide (courbe en bleu avec points bleus). Les anneaux verts représentent l'intensité intégrée sur les coins issue des simulations numériques pour une zone de $24 \text{ nm} \times 24 \text{ nm}$.

15.2 Focalisation d'un plasmon de surface

Nous savons maintenant que l'existence de la largeur de coupure est directement liée à la conversion du plasmon en onde unidimensionnelle. Comme nous l'avons mentionné au tout début de cette partie, ces guides vont servir à propager un mode plasmon excité à partir d'une des sources électroluminescentes présentées lors de la partie II. La géométrie en bout de guide va donc être déterminante sur l'efficacité de ce couplage. Nous avons ajouté une terminaison triangulaire à la fin des guides, dans le but d'améliorer l'efficacité du couplage. Ce type de géométrie est couramment utilisé pour exciter efficacement un plasmon de surface dans une structure guidante [15, 20]. Ce type de structure est aussi utilisé pour focaliser où concentrer un SPP sur une zone particulière [48, 49].

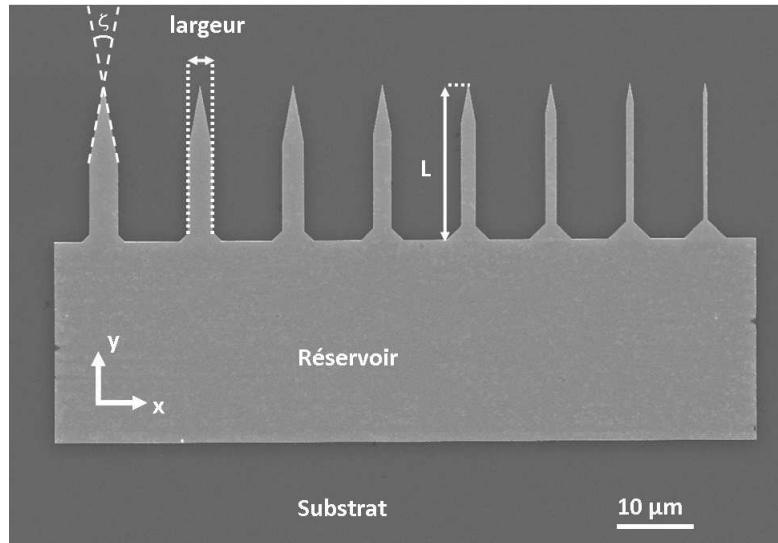


FIGURE 15.8 – Image par microscope électronique à balayage d’une structure utilisée pour l’étude. L’angle de la terminaison triangulaire est ici de 20° .

La longueur des guides est toujours fixée à $23 \mu\text{m}$. L’angle de la terminaison triangulaire (ζ) est varié de 10° à 90° par pas de 10° . Les largeurs des guides considérées sont les mêmes que pour l’étude précédente. Une image MEB d’une structure avec des terminaisons de 20° est présentée sur la figure 15.8.

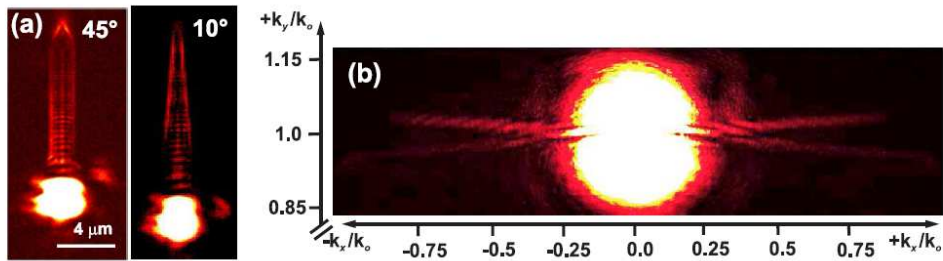


FIGURE 15.9 – (a) Images de la distribution d’intensité pour deux guides de $2 \mu\text{m}$ de larges avec deux angles en bout de pointe différents. (b) Vue d’intérêt du plan de Fourier pour le guide avec une pointe de 10° .

Sur la figure 15.9 (a) sont présentées deux images obtenues avec le microscope à fuites radiatives. Il s’agit de la distribution d’intensité d’un plasmon se propageant sur un guide de $2 \mu\text{m}$ de large pour deux angles de pointes différents. Dans les deux cas, les bords de la pointe s’illuminent. Néanmoins, pour le guide avec une terminaison à 10° , le bout de la pointe n’est pas visible contrairement à celui avec un angle à 45° . Sur la figure 15.9 (b) est représentée une vue partielle du plan de Fourier pour le guide avec la pointe de 10° . L’image a été volontairement saturée pour faire apparaître les deux lignes caractéristiques de la diffraction du plasmon par une arête. La signature du plasmon de surface se propageant dans le guide est existante dans le centre du spot. Ce qui est intéressant ici c’est la présence de quatre lignes.

L'angle formé par les lignes de chaque côté vaut une valeur de 10° . Ceci signifie que ces lignes sont bien la signature de la diffraction par les arêtes métalliques. Ce résultat est dépendant directement de l'inclinaison des cotés par rapport à la direction de propagation du SPP. Celui-ci disparaît lorsque la partie droite du guide devient plus importante. Cela signifie aussi que la signature de chaque arête sont superposées. Dans le cas du guide avec l'angle de 45° une seule ligne est visible. Dans ce cas là, la partie inclinée de l'arête est relativement faible par rapport à la partie rectiligne. La diffraction par la partie inclinée est présente dans les plans de Fourier, mais son intensité est trop faible pour être perçue ou bien est écrantée par les autres signatures.

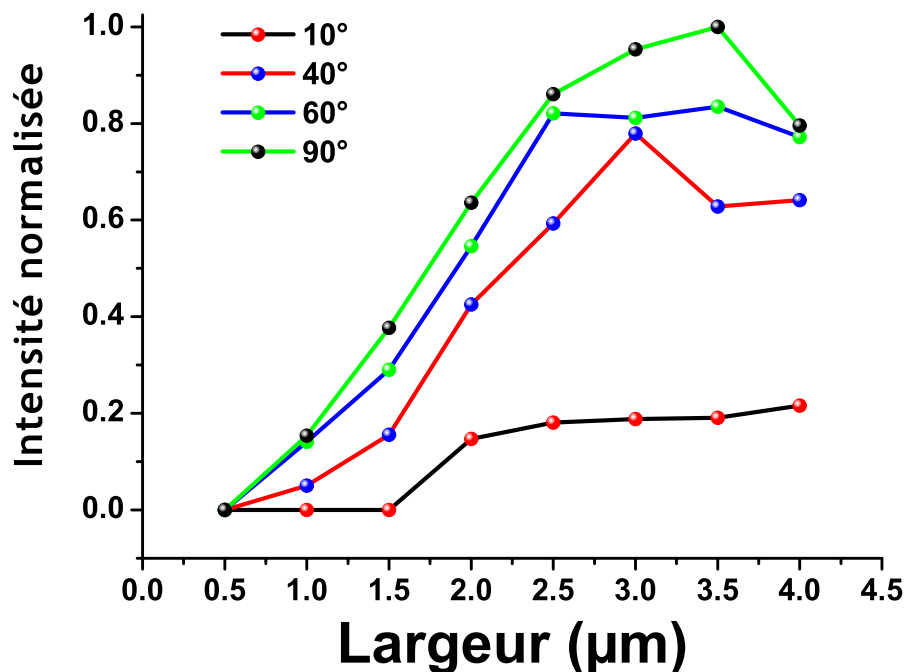


FIGURE 15.10 – Représentation graphique de l'intensité diffusée en bout de guide en fonction de l'angle de la pointe et de la largeur du guide.

Notre intérêt se portant sur l'aspect de focalisation du plasmon, seuls les plans images ont été utilisés. Les résultats pour quatre angles sont représentés sur la figure 15.10. L'intensité diffusée en bout de pointe a été normalisée par rapport au maximum de toutes les valeurs mesurées. Pour mesurer l'intensité diffusée en bout de guide, des profils suivant la direction y sur quatre lignes de pixels de part et d'autre du centre du guide ont été réalisés (moyenne sur huit lignes de pixels). Ces courbes ressemblent à celle de L_{SPP} présentée sur la figure 15.7. Il est clair que plus le plasmon se propage dans le guide plus son intensité diffusée en bout de pointe va être importante. Néanmoins, cette intensité est aussi une fonction de l'angle. D'après les résultats obtenus, il semblerait qu'un angle de 90° avec une largeur de $3.5 \mu\text{m}$ soit le meilleur choix.

Chapitre 16

Conclusion

Dans cette partie, nous avons étudié la propagation d'un plasmon de surface or/air sur un guide métallique de largeur finie. Au cours des caractérisations, nous nous sommes rendus compte de la présence d'une forte intensité lumineuse supportée par les arêtes des guides. Grâce à une analyse dans l'espace réciproque, il a été possible d'identifier cette radiation comme étant une onde évanescente unidimensionnelle. L'étude des différentes propriétés de cette onde 1D ainsi que la technique de caractérisation employée nous a permis de l'identifier comme la diffraction du plasmon par une arête métallique. L'utilisation de la microscopie à fuites radiatives a permis de mettre en évidence ce phénomène de conversion, là où d'autres techniques ont échouées.

Nous avons par la suite montré que l'existence même d'une largeur de coupure présente dans ce type de structure est directement liée à l'interaction du plasmon avec les arêtes d'un guide. Grâce à ce résultat, il est maintenant possible d'en tenir compte dans le développement de nouveaux systèmes de guidages plasmoniques.

L'ajout d'une structure de focalisation à la fin du guide nous a conduit à la même conclusion que celle portant sur un guide normal. C'est-à-dire que la focalisation du plasmon est directement liée à la largeur du guide et donc à sa longueur de propagation.

Cette étape de caractérisation a permis de déterminer les différentes caractéristiques de guidages d'un mode plasmon sur un guide ruban. L'étape suivante est maintenant d'intégrer ces guides à proximité d'une source électroluminescente pour guider un plasmon de surface excité électriquement.

Bibliographie

- [1] J. D. Meindl, J. A. Davis, P. Zarkesh-Ha, C. S. Patel, K. P. Martin, and P. A. Kohl, “Interconnect opportunities for gigascale integration,” *IBM Journal of Research and Development* **46**, 245–263 (2002).
- [2] R. Zia, J. A. Schuller, A. Chandran, and M. L. Brongersma, “Plasmonics : the next chip-scale technology The development of chip-scale electronics and photonics has led to,” **9**, 20–27 (2006).
- [3] J. J. Ju, S. Park, M.-s. Kim, J. T. Kim, S. K. Park, Y. J. Park, and M.-H. Lee, “40 Gbit/s light signal transmission in long-range surface plasmon waveguides,” *Applied Physics Letters* **91**, 171117 (2007).
- [4] A. Ptilakis and E. Kriezis, “Longitudinal 2x2 Switching Configurations Based on Thermo-Optically Addressed Dielectric-Loaded Plasmonic Waveguides,” *Journal of Lightwave Technology* pp. 1–1.
- [5] D. Kalavrouziotis, S. Papaioannou, G. Giannoulis, D. Apostolopoulos, K. Hassan, L. Markey, J. Weeber, A. Dereux, A. Kumar, S. I. Bozhevolnyi, M. Baus, M. Karl, T. Tolga, O. Tsilipakos, A. Ptilakis, E. Kriezis, H. Avramopoulos, K. Vyrsokinos, and N. Pleros, “Plasmonics Going Practical : Tb/s WDM transmission and high-quality switching using plasmons,” Submitted to *Nature Photonics* .
- [6] H. Raether, “Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings,” (1988).
- [7] M. Bashevoy, F. Jonsson, A. Krasavin, N. Zheludev, Y. Chen, and M. Stockman, “Generation of traveling surface plasmon waves by free-electron impact,” *Nano Letters* **6**, 1113–1115 (2006).
- [8] W. Cai, R. Sainidou, J. Xu, A. Polman, and F. J. García de Abajo, “Efficient generation of propagating plasmons by electron beams.” *Nano Letters* **9**, 1176–81 (2009).
- [9] E. J. R. Vesseur, R. de Waele, M. Kuttge, and A. Polman, “Direct observation of plasmonic modes in au nanowires using high-resolution cathodoluminescence spectroscopy.” *Nano Letters* **7**, 2843–6 (2007).
- [10] E. Devaux, T. W. Ebbesen, J.-C. Weeber, and A. Dereux, “Launching and decoupling surface plasmons via micro-gratings,” *Applied Physics Letters* **83**, 4936 (2003).
- [11] A. Otto, “Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection,” *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei* **216**, 398–410 (1968).

-
- [12] E. Kretschmann, "Decay of non radiative surface plasmons into light on rough silver films. Comparison of experimental and theoretical results," *Optics Communications* **6**, 185–187 (1972).
- [13] J. Takahara, S. Yamagishi, H. Taki, A. Morimoto, and T. Kobayashi, "Guiding of a one-dimensional optical beam with nanometer diameter." *Optics letters* **22**, 475–7 (1997).
- [14] H. Ditlbacher, A. Hohenau, D. Wagner, U. Kreibig, M. Rogers, F. Hofer, F. Auszenegg, and J. Krenn, "Silver nanowires as surface plasmon resonators," *Physical Review Letters* **95**, 257403 (2005).
- [15] E. Verhagen, M. Spasenović, A. Polman, and L. Kuipers, "Nanowire Plasmon Excitation by Adiabatic Mode Transformation," *Physical Review Letters* **102**, 1–4 (2009).
- [16] M. Song, A. Bouhelier, P. Bramant, J. Sharma, E. Dujardin, D. Zhang, and G. Colas-des Francs, "Imaging Symmetry-Selected Corner Plasmon Modes in Penta-Twinned Crystalline Ag Nanowires." *ACS nano* (2011).
- [17] T. Laroche, A. Vial, and M. Roussey, "Crystalline structure's influence on the near-field optical properties of single plasmonic nanowires," *Applied Physics Letters* **91**, 123101 (2007).
- [18] J.-C. Weeber, Y. Lacroute, and A. Dereux, "Optical near-field distributions of surface plasmon waveguide modes," *Physical Review B* **68**, 1–10 (2003).
- [19] D. K. Gramotnev and S. I. Bozhevolnyi, "Plasmonics beyond the diffraction limit," *Nature Photonics* **4**, 83–91 (2010).
- [20] J.-C. Weeber, J. Krenn, A. Dereux, B. Lamprecht, Y. Lacroute, and J. Goudonnet, "Near-field observation of surface plasmon polariton propagation on thin metal stripes," *Physical Review B* **64**, 1–9 (2001).
- [21] R. Zia, J. Schuller, and M. Brongersma, "Near-field characterization of guided polariton propagation and cutoff in surface plasmon waveguides," *Physical Review B* **74**, 1–12 (2006).
- [22] J.-C. Weeber, M. U. González, A.-L. Baudrion, and A. Dereux, "Surface plasmon routing along right angle bent metal strips," *Applied Physics Letters* **87**, 221101 (2005).
- [23] M. González, J.-C. Weeber, A.-L. Baudrion, A. Dereux, A. Stepanov, J. Krenn, E. Devaux, and T. Ebbesen, "Design, near-field characterization, and modeling of 45° surface-plasmon Bragg mirrors," *Physical Review B* **73**, 19–21 (2006).
- [24] J.-C. Weeber, A. Bouhelier, G. C. D. Francs, L. Markey, and A. Dereux, "Submicrometer in-plane integrated surface plasmon cavities." *Nano Letters* **7**, 1352–9 (2007).
- [25] A. Hohenau, J. R. Krenn, A. L. Stepanov, A. Drezet, H. Ditlbacher, B. Steinberger, A. Leitner, and F. R. Auszenegg, "Dielectric optical elements for surface plasmons." *Optics Letters* **30**, 893–5 (2005).
- [26] J. Grandidier, S. Massenot, G. des Francs, A. Bouhelier, J.-C. Weeber, L. Markey, A. Dereux, J. Renger, M. González, and R. Quidant, "Dielectric-loaded

- surface plasmon polariton waveguides : Figures of merit and mode characterization by image and Fourier plane leakage microscopy,” *Physical Review B* **78**, 1–9 (2008).
- [27] J. Grandidier, G. Des Francs, S. Massenot, A. Bouhelier, L. Markey, J. Weeber, C. Finot, and A. Dereux, “Gain-assisted propagation in a plasmonic waveguide at telecom wavelength,” *Nano Letters* **9**, 2935–2939 (2009).
- [28] S. Bozhevolnyi, V. Volkov, E. Devaux, and T. Ebbesen, “Channel plasmon-polariton guiding by subwavelength metal grooves,” *Physical review letters* **95**, 46802 (2005).
- [29] S. Bozhevolnyi, V. Volkov, E. Devaux, J. Laluet, and T. Ebbesen, “Channel plasmon subwavelength waveguide components including interferometers and ring resonators,” *Nature* **440**, 508–511 (2006).
- [30] E. Moreno, S. Rodrigo, S. Bozhevolnyi, L. Martín-Moreno, and F. García-Vidal, “Guiding and Focusing of Electromagnetic Fields with Wedge Plasmon Polaritons,” *Physical Review Letters* **100**, 1–4 (2008).
- [31] V. S. Volkov, S. I. Bozhevolnyi, E. Devaux, and T. W. Ebbesen, “Compact gradual bends for channel plasmon polaritons.” *Optics Express* **14**, 4494–503 (2006).
- [32] T. Yatsui, M. Kourogi, and M. Ohtsu, “Plasmon waveguide for optical far/near-field conversion,” *Applied Physics Letters* **79**, 4583 (2001).
- [33] A. Boltasseva, V. S. Volkov, R. B. Nielsen, E. Moreno, S. G. Rodrigo, and S. I. Bozhevolnyi, “Triangular metal wedges for subwavelength plasmon-polariton guiding at telecom wavelengths.” *Optics Express* **16**, 5252–60 (2008).
- [34] A. Bouhelier, T. Huser, H. Tamaru, H. G. untherodt, D. Pohl, F. Baida, and D. Van Labeke, “Plasmon optics of structured silver films,” *Physical Review B* **63**, 155404 (2001).
- [35] A. Bouhelier and G. Wiederrecht, “Excitation of broadband surface plasmon polaritons : Plasmonic continuum spectroscopy,” *Physical Review B* **71**, 195406 (2005).
- [36] A. Drezet, A. Hohenau, D. Koller, A. Stepanov, H. Ditlbacher, B. Steinberger, F. Aussenegg, A. Leitner, and J. Krenn, “Leakage radiation microscopy of surface plasmon polaritons,” *Materials Science and Engineering : B* **149**, 220–229 (2008).
- [37] A. Bouhelier and G. Wiederrecht, “Surface plasmon rainbow jets,” *Optics Letters* **30**, 884–886 (2005).
- [38] L. Novotny, “Allowed and forbidden light in near-field optics. I. A single dipolar light source,” *Journal of the Optical Society of America A* **14**, 91–104 (1997).
- [39] G. des Francs, J. Grandidier, S. Massenot, A. Bouhelier, J. Weeber, and A. Dereux, “Integrated plasmonic waveguides : a mode solver based on density of states formulation,” *Physical Review B* **80**, 115419 (2009).
- [40] S. Massenot, J.-C. Weeber, A. Bouhelier, G. Colas des Francs, J. Grandidier, L. Markey, and A. Dereux, “Differential method for modeling dielectric-loaded surface plasmon polariton waveguides,” *Optics Express* **16**, 17599–17608 (2008).

-
- [41] M. Nevière and E. Popov, *Light propagation in periodic media : differential theory and design*, vol. 81 (CRC, 2003).
- [42] R. Wallis, A. Maradudin, and G. Stegeman, “Surface polariton reflection and radiation at end faces,” *Applied Physics Letters* **42**, 764–766 (1983).
- [43] R. Oulton, D. Pile, Y. Liu, and X. Zhang, “Scattering of surface plasmon polaritons at abrupt surface interfaces : Implications for nanoscale cavities,” *Physical Review B* **76**, 1–12 (2007).
- [44] P. Dawson, F. De Fornel, and J. Goudonnet, “Imaging of surface plasmon propagation and edge interaction using a photon scanning tunneling microscope,” *Physical Review Letters* **72**, 2927–2930 (1994).
- [45] P. Berini, “Plasmon-polariton modes guided by a metal film of finite width bounded by different dielectrics,” *Optics Express* **7**, 329–335 (2000).
- [46] R. Zia, A. Chandran, and M. L. Brongersma, “Dielectric waveguide model for guided surface polaritons.” *Optics Letters* **30**, 1473–5 (2005).
- [47] B. Lamprecht, J. R. Krenn, G. Schider, H. Ditlbacher, M. Salerno, N. Felidj, a. Leitner, F. R. Aussenegg, and J. C. Weeber, “Surface plasmon propagation in microscale metal stripes,” *Applied Physics Letters* **79**, 51 (2001).
- [48] E. Verhagen, A. Polman, and L. K. Kuipers, “Nanofocusing in laterally tapered plasmonic waveguides.” *Optics Express* **16**, 45–57 (2008).
- [49] M. Stockman, “Nanofocusing of Optical Energy in Tapered Plasmonic Waveguides,” *Physical Review Letters* **93**, 1–4 (2004).

Conclusion générale

Au cours de ce travail de thèse, nous nous sommes intéressés au contrôle de plasmons de surface par le biais d'une commande électrique externe. Les antennes optiques sont connues pour confiner et exalter très localement un champ électromagnétique. Ces objets s'avèrent essentiels pour contrôler finement l'interaction des photons avec des structures nanométriques. Dans le cadre de cette thèse, il a été choisi de doter ces composants passifs de fonctionnalités actives. Pour cela, différentes approches expérimentales ont été développées.

Notre première démarche a consisté en la mise en contact de nano-antennes avec un milieu diélectrique pilotable électriquement. A cet effet, nous avons employé des cristaux liquides. Ceux-ci ont la particularité de pouvoir changer d'indice sous l'application d'un champ électrique. Le principe de fonctionnement utilisé est directement relié au principe d'un circuit RLC en électronique contenant une capacité variable. Dans le cas de la configuration choisie, la capacité variable est représentée par les cristaux liquides. Grâce à l'utilisation d'électrodes planaires, nous avons montré un changement des propriétés spectrales et de diffusion d'une antenne optique. Cette configuration nous a d'ailleurs conduit à l'obtention du premier tuner plasmonique.

La seconde approche abordée au cours de ce travail de thèse concerne la création de sources électro-plasmoniques. Dans cette optique, les antennes sont insérées dans une architecture électronique. Pour cela deux type de configurations ont été étudiées. La première est basée sur l'utilisation de nanotubes de carbone tandis que la seconde est basée sur l'utilisation de jonctions tunnels. Dans le cas des nanotubes de carbone, ceux-ci sont placés dans une configuration de transistor à effet de champ. La génération de lumière avec ce type de composants est obtenue grâce à la recombinaison radiative des charges au niveau du nanotube. Ces sources ont la particularité d'être déplaçables le long du nanotube, ouvrant ainsi la possibilité de créer un modulateur plasmonique piloté électriquement. Mon travail a surtout consisté au développement de méthodes de fabrications et de caractérisations de tels composants. Nous avons montré qu'il était possible de réaliser de tels systèmes au sein de l'équipe. Au moment de la rédaction de ce manuscrit seule l'électroluminescence reste à démontrer ainsi que le couplage à un SPP.

La création ainsi que l'utilisation de jonction tunnels planaires dans le domaine de la plasmonique est très récent. Ces objets souvent fabriqués par électro-migration, possèdent des propriétés électriques et optiques non linéaire intéressantes. Nous avons notamment durant cette thèse mise en évidence que ce type de structure permettait une exaltation du signal de second harmonique 10 fois supérieur à une jonction fabriquée par lithographie. Nous avons montré pour la première fois une génération de lumière par des jonctions tunnels planaires. Ce résultat prometteur

permet d'envisager l'intégration de sources à plasmons extrêmement localisées et pilotables électriquement. Cependant, il s'est avéré que ces sources sont pour l'instant instables dans le temps. L'étude plus approfondie de ses composants, ainsi que la recherche d'une stabilisation, sont toutefois prévues. Durant ce travail de thèse, nous avons aussi mis en évidence que ces composants s'apparentent à un transducteur électro-plasmonique complet. Néanmoins, les phénomènes mis en jeu dans le cas de la conversion photon-électron ne sont pas encore bien identifiés et nécessitent une étude plus approfondie.

Les domaines apparentés à ce travail de thèse sont variés. Ceci m'a permis d'apprendre et maîtriser un grand nombre de techniques de fabrications et de caractérisations notamment en optiques. Bien que durant ce travail de thèse de nombreux résultats aient été obtenus, certains points restent encore à développer. Les premiers résultats de transductions permettent cependant d'envisager un bon nombre d'opportunités quant à l'excitation et le contrôle des plasmons de surfaces.

Annexe

Annexe A

Méthodes de Fabrication

A.1 Principe de fabrication

Il existe plusieurs techniques de nano-fabrications. L'une des plus utilisée reste la lithographie. La lithographie vient du grec *lithos* qui signifie pierre et *graphein* qui signifie écrire. Cette technique permet la reproduction et le transfert d'un motif sur un support. Dans notre cas, la lithographie nous permet de dessiner des structures à l'échelle de la dizaine de nanomètres. Nous utilisons au laboratoire principalement la photolithographie UV et la lithographie par faisceau d'électron (LFE). Une résine polymère est étalée de façon uniforme sur le substrat par spin-coating (cf. figure A.1 (1)). Cette résine est ensuite insolée soit par des électrons soit par des photons (Fig. A.1 (2)). L'échantillon après avoir été insolé, est développé au même titre qu'une photographie afin de révéler les motifs (Fig. A.1 (3)). Ce dernier est ensuite introduit dans un évaporateur sous vide, et est recouvert d'une couche métallique (où d'oxyde suivant les besoins) (Fig. A.1 (4)). La dernière étape appelée "lift-off", consiste à retirer le reste de résine afin d'obtenir sur l'échantillon le seul motif des structures (Fig. A.1 (5)). Toutes les étapes sont présentées sur la figure A.1.

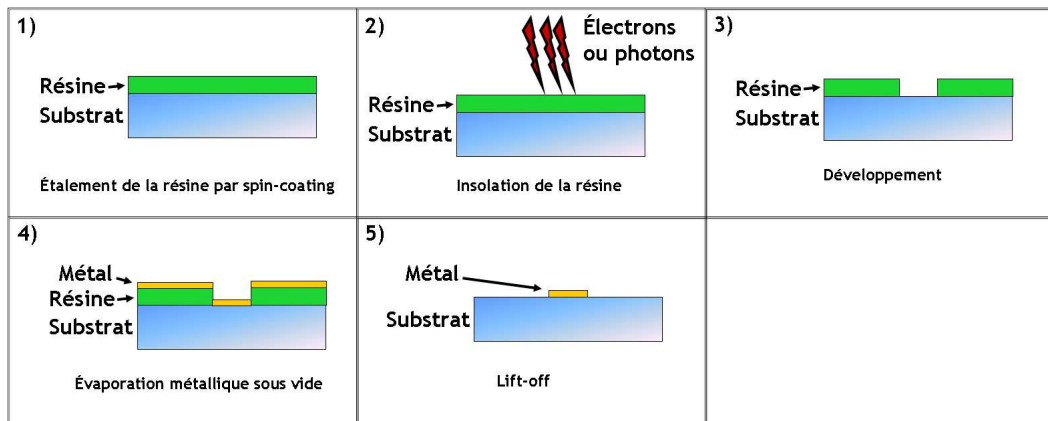


FIGURE A.1 – Représentation schématique des différentes phases d'une lithographie.

A.2 Lithographie UV en mode contact

La lithographie UV est une méthode très utilisée dans l'industrie. Elle permet d'insoler de grandes surfaces en très peu de temps. La création des motifs est obtenue grâce à l'utilisation d'un masque. Cependant la résolution obtenue avec ce type de lithographie est limitée par le critère de Rayleigh. Afin d'augmenter ce paramètre, il existe différentes techniques comme notamment mettre l'échantillon en contact avec le masque. Dans notre cas nous n'avons pas cherché à optimiser notre résolution. Cette étape de lithographie n'ayant pour but que de réaliser des électrodes macroscopiques, nous avons limité la taille des plus petits motifs à $1\ \mu\text{m}$. Le dessin des électrodes utilisé pour l'électro-migration est présenté sur la figure A.2. Nous utili-

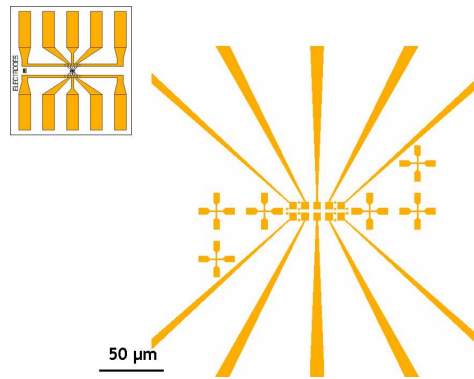


FIGURE A.2 – Représentation schématique du dessin des électrodes.

sons un masque commercial réalisé par la société Photronics. Il s'agit d'un masque en quartz dont les motifs ont été réalisés en chrome. L'appareil utilisé pour l'insolation est le modèle "MJB4" de la société Süss Microtech. Elle utilise comme source lumineuse une lampe Mercure Xénon (Hg-Xe) ainsi qu'un système de filtres d'émissions, de miroirs et de lentilles frontales permettant de sélectionner la gamme de longueurs d'ondes désirée. Nous avons utilisés la gamme UV400 ($\lambda_{excitation}$ comprise entre 350 nm et 450 nm). Les motifs sont gravés dans une résine photosensible négative. Cela signifie que ce qui n'est pas insolé sera dissout dans le solvant pendant la procédure de développement.

Protocole expérimentale :

Étape 1 : Nettoyage avec de l'eau savonneuse et des ultrasons de lamelles de verre de $22\ \text{mm} \times 22\ \text{mm}$. Rinçage des lamelles dans un bain d'acétone afin d'enlever le reste de savon. Finalement celles-ci sont rincées dans un bain d'isopropanol (IPA) puis séchées à l'azote.

Étape 2 : $160\ \mu\text{L}$ de résine AZ nLof 2070 dilué dans du propylène glycol éther acétate (PGMEA) [1 :1] en volume, sont déposés sur une lame de verre de $22\ \text{mm} \times 22\ \text{mm}$. L'étalement est réalisé grâce à un spin-coater dont les valeurs sont résumées dans le tableau A.1. Ces paramètres permettent d'obtenir une couche d'épaisseur homogène sur toute la surface du substrat. L'épaisseur de la résine est d'environ $1\ \mu\text{m}$.

	temps	accélération	vitesse max
rampe 1	1	100	100
rampe 2	5	300	500
rampe 3	50	2500	3000

TABLE A.1 – Valeurs de vitesse pour l'étalement de la résine UV.

- Étape 3 :** Recuit à 110°C pendant 2 min sur une plaque chauffante régulée en température
- Étape 4 :** Exposition en mode "UV400" et "hard contact" (pour augmenter la résolution) avec une dose de 64 mJ/cm²
- Étape 5 :** Recuit à 112°C pendant 5 min après l'exposition
- Étape 6 :** Développement pendant 2 min dans une solution de AZ-mif826 sans agiter. Rinçage pour stopper la réaction dans l'eau désionisée, puis séchage à l'azote.
- Étape 7 :** Nouvelle exposition sans masque avec une dose de 370 mJ/cm². Cette étape permet de figer le motif.
- Étape 8 :** Recuit à 112°C pendant 5 min sur plaque chauffante.
- Étape 9 :** Evaporation de 2 nm de chrome et 50 nm d'or à une pression de 1.0×10^{-7} mbar, avec une vitesse constante de 0.1 nm/s.
- Étape 10 :** Lift-off dans du NMP à 55°C pendant 30 min environ, puis rinçage avec de l'isopropanol.

Après 10 étapes de fabrication, on obtient l'échantillon final présenté sur la figure A.3.

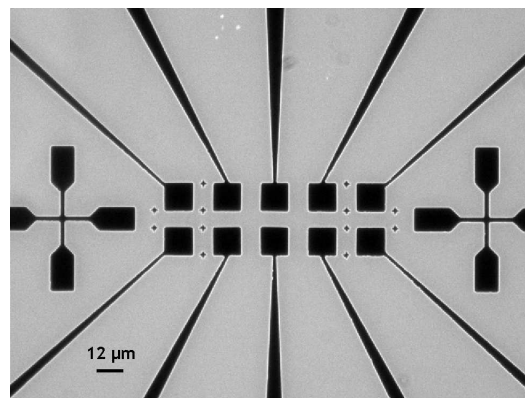


FIGURE A.3 – Image optique en transmission de l'échantillon final.

A.3 Lithographie par faisceau d'électron

La lithographie par faisceau d'électron (LFE ou lithographie e-beam) fonctionne sur le même principe que la photolithographie UV. La première différence est que cette fois il ne s'agit plus d'utiliser des photons mais des électrons. De ce fait comme la longueur d'onde d'un électron est beaucoup plus petite que celle d'un photon

UV, la résolution obtenue est bien meilleure. Typiquement avec notre système de LFE nous avons une résolution minimum de 20 nm (contrairement à 400 nm pour la photolithographie UV). Une autre différence vient de la conduction de l'échantillon. En effet la lithographie UV s'applique à tous les types de substrats, mais ce n'est pas le cas pour la lithographie e-beam. Elle nécessite l'utilisation d'un substrat conducteur. Pour cela une couche conductrice d'oxyde indium étain (ITO) d'une vingtaine de nanomètres est évaporée sur une lamelle de verre de 22 mm × 22 mm et 170 μm d'épais. L'utilisation de telles lamelles de verres est adéquate par rapport à la correction des objectifs à immersion d'huile présents au laboratoire. La lithographie UV est cependant plus utilisée dans l'industrie car il s'agit d'une méthode de lithographie *parallèle*, alors que la LFE est une méthode en *série*.

Protocole expérimentale :

Étape 1 : Nettoyage avec de l'eau savonneuse et des ultrasons de lamelles de verre de 22 mm × 22 mm. Rinçage des lamelles dans un bain d'acétone afin d'enlever le reste de savon. Finalement celles-ci sont rincées dans un bain d'isopropanol (IPA) puis séchaient à l'azote.

Étape 2 : Mise sous vide dans un évaporateur par plasma d'argon.

Étape 3 : Les échantillons sont chauffés à 150°C pendant d'évaporation afin d'oxyder l'ITO et le rendre conducteur. L'ITO est évaporé grâce à un plasmon d'argon à une pression de 3 mbar et une puissance de 100 mW. L'évaporation dure 30 s et donne une résistance de l'ordre de 1.8 k Ω

Les lithographies par faisceau d'électron sont réalisées à partir d'un microscope électronique à balayage (MEB) de marque JEOL (modèle 6500) équipé d'un "e-beam blanker". La création des motifs est effectuée à partir d'un ordinateur équipé d'un logiciel de dessin assisté par ordinateur (PAO) (Elphy quantum de Raith version 3.0).

Pour la réalisation d'un échantillon, plusieurs paramètres peuvent être ajustés par l'utilisateur. Il s'agit notamment du courant de sonde "I", de la tension d'accélération "HT" et de la hauteur de l'échantillon "Z". Les paramètres d'insolations sont dépendants quant à eux de la forme dessinée. Il existe 3 catégories reconnus par le logiciel de PAO : les aires, les lignes, les points. Pour toutes les catégories, il existe un paramètre qui est le temps d'insolation pour réaliser un point (appelé "dwelltime"). Lorsque le système doit réaliser des lignes ou des aires, il discrétise la structure par un réseau de points unidimensionnel (pour les lignes) et bidimensionnelle (pour les aires). Dans ce cas, le logiciel rajoute un paramètre qui permet de contrôler l'espacement des points ("stepsize").

Protocole expérimentale :

Étape 1 : Étalement de 160 μL d'une solution de PMMA dilué dans l'éthylactate en concentration en volume [1 :1], sur un substrat conducteur. Il s'agit d'une résine électro-sensible positif. Ceci signifie que les parties qui seront insolées seront dissoutes dans le développeur. Les paramètres de spin-coating utilisé sont résumés dans le tableau A.2. Ces paramètres d'étalement permettent d'obtenir une épaisseur de résine de 280 nm environ.

	temps	accélération	vitesse max
rampe 1	10	100	100
rampe 2	1	3000	4000
rampe 3	60	3000	8000

TABLE A.2 – Valeurs de vitesse pour l'étalement de la résine e-beam.

Étape 2 : Recuit sur une plaque chauffante à 170°C pendant 10 min.

Étape 3 : Insolation des motifs grâce au MEB. Les paramètres utilisés sont résumés dans le tableau A.3.

I (pA)	55	210
HV(kV)	20	20
Z (mm)	21.0	21.0
sensibilité résine	150	150
step-size(nm)	24.4	24.4
dwell-time(μs)	16.237	4.253
facteur de dose	2.6	1.5

TABLE A.3 – Valeurs utilisées pour l'insolation.

Étape 4 : Développement de l'échantillon insolé dans une solution de MIBk-IPA en concentration [1 : 3] en volume, durant 45 s avec des ultrasons. Pour arrêter la réaction les échantillons sont immergés dans une solution d'IPA pur pendant 45 s avec ultrasons.

Étape 5 : Introduction des échantillons dans un évaporateur sous vide pour évaporer un film d'adhésion de chrome de 4 nm d'épais et 50 nm d'or. Durant l'évaporation la vitesse est maintenue à 0.1 nm/s sous une pression de 1.0×10^{-7} mBar.

Étape 6 : Dissolution du reste de résine présent sur l'échantillon en immergeant l'échantillon dans un bûcher de trichloréthylène à 100°C pendant 2h.

Un exemple d'échantillon est présenté sur la figure A.4. Ce type de structure a été développée dans le but de réaliser plusieurs niveaux de lithographie sur un même échantillon (cf. section A.4).

A.4 Lithographie par faisceau d'électron multi-niveaux

Les méthodes présentées précédemment ne permettent de réaliser qu'un seul niveau de lithographie. Nous présentons ici la technique employée pour réaliser une lithographie électronique sur plusieurs niveaux. Ce concept permet de réaliser plusieurs "étages" de lithographies successives, permettant de complexifier à volonté une structure existante. Nous avons appliqué cette méthode pour réaliser des structures plasmoniques, des transistors à effet de champ avec des nanotubes de carbone (CN-FET) (cf. chapitre 7) et des nano-fils (cf. chapitre 8.1). Toute cette méthode est

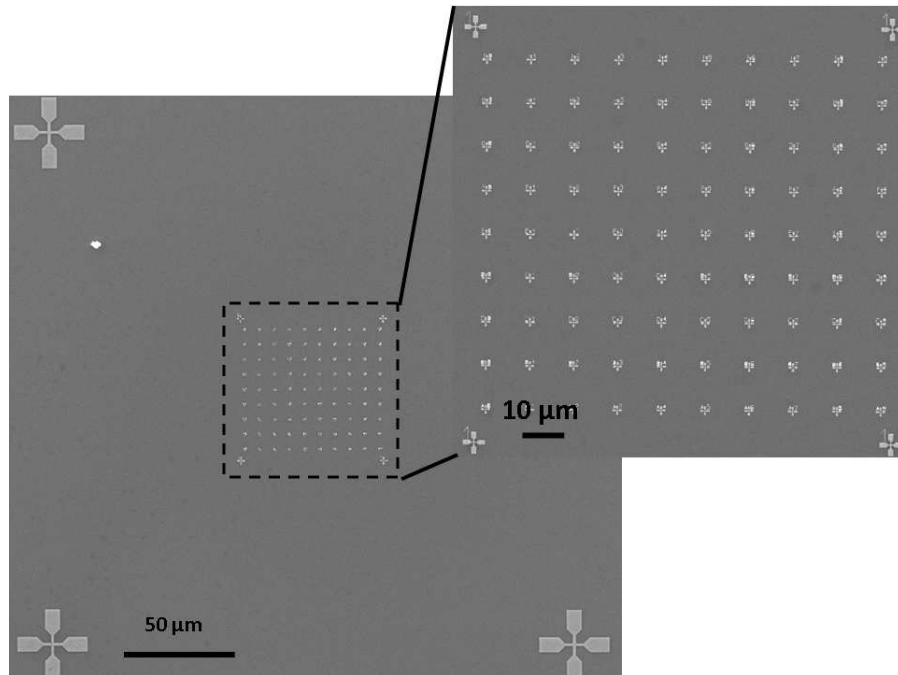


FIGURE A.4 – Image MEB d'un échantillon réalisé par lithographie à faisceau d'électron.

basée sur l'utilisation du logiciel de PAO. Nous décrivons dans cette section son utilisation ainsi que les outils nécessaires à la réalisation d'une lithographie à plusieurs niveaux.

Durant cette thèse j'ai utilisé la version 3.0 d'ELPHY QUANTUM pour la réalisation de mes échantillons lithographiés. Une impression de la fenêtre de travail ainsi que les principales boîtes de dialogues de ce logiciel sont présentées sur la figure A.5.

Les différentes boîtes de dialogues sont :

module n°1 : Il s'agit du mode imagerie du logiciel. Cela permet de réaliser des images directement depuis l'ordinateur de lithographie. Une fois l'image acquise, il est possible de repérer certains éléments par un drapeau. Ces positions dans le cas d'une lithographie multi-niveaux sont directement reportées dans le dessin. Nous avons utilisé ce mode notamment dans le cas de réalisation des CN-FETs.

module n°2 : Module de contrôle et de déplacement de l'échantillon. Permet le déplacement de façon précise d'un motif à l'autre.

module n°3 : Boîte de dialogue des structures. Celle-ci contient tous les dessins contenus dans une base de donnée.

module n°4 : Module d'ajustement des coordonnées. En effet le logiciel ELPHY et le MEB n'utilisent pas le même système de coordonnées. Cette boîte de dialogue permet de définir une origine commune aux deux systèmes.

module n°5 : Module d'exposition. Celui-ci est très utile dans le cas des lithographies à multi-niveaux. C'est grâce à lui que l'insolation avec les bons paramètres va être effectuée.

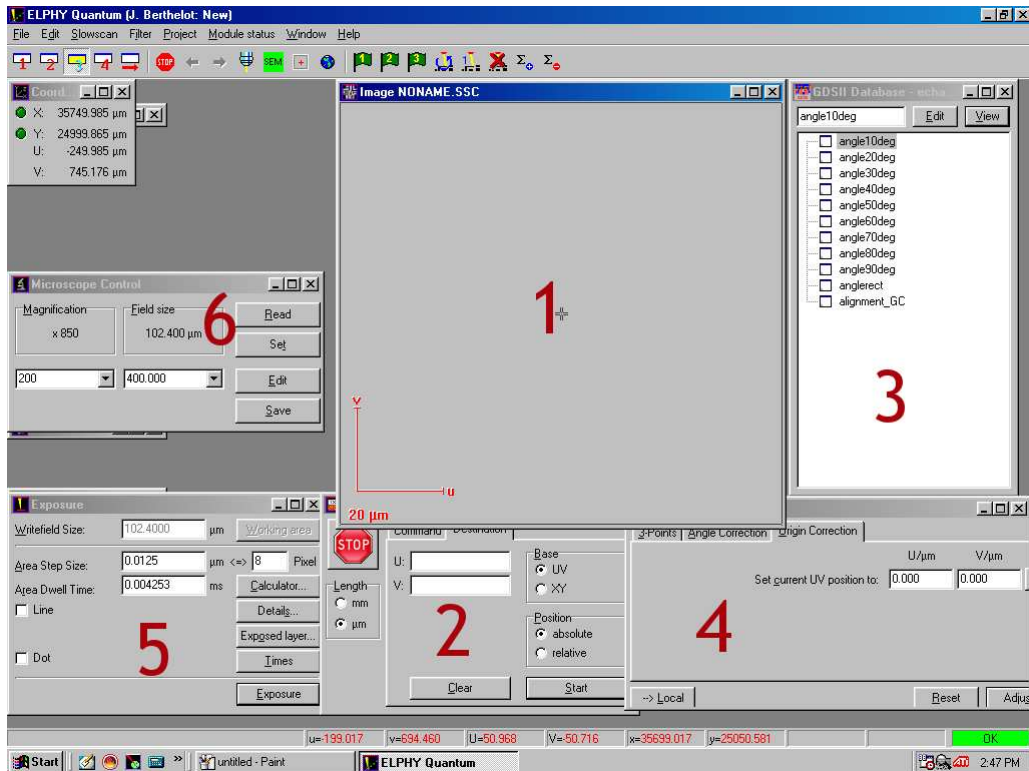


FIGURE A.5 – Fenêtre de travail du logiciel ELPHY ainsi que les principales boites de dialogues

module n°6 : Contrôle du zoom du MEB à partir du logiciel ELPHY. Il est nécessaire d'ajuster le zoom à la taille de la fenêtre de travail.

Le logiciel utilise le format "GDSII" pour la réalisation des dessins. Avant de commencer le dessin d'un échantillon, il est nécessaire de définir une fenêtre de travail. Cette zone sera l'aire de travail reconnue par le logiciel. Les limites de la zone sont repérées par un carré avec des côtés grisés. Les motifs désirés devront donc être dessinés dans cette zone. Pour réaliser une lithographie sur plusieurs niveaux, nous avons besoin de réaligner la fenêtre de travail du logiciel par rapport à la première lithographie. Pour cela nous utilisons des marques de repérages sous forme de croix. Nous utilisons cette structure pour aligner la fenêtre de travail du logiciel avec la structure présente sur l'échantillon. Il a été choisi de présenter la méthode en prenant comme exemple la réalisation de guides plasmoniques avec un réseau de diffraction pour l'excitation d'un mode plasmon de surface.

La première étape concerne la création du réseau. Il s'agit de réaliser des lignes de $100 \mu\text{m}$ de long avec une largeur de 100 nm et un pas de réseau de $2 \mu\text{m}$. Le dessin de cette structure est présenté sur la figure A.6. Pour procéder à une seconde lithographie au dessus de ce réseau de trait, des marques d'alignement de deux tailles différentes sont ajoutées. Les plus grosses vont permettre de réaliser un alignement grossier (en rouge), alors que les marques les plus petites vont servir à s'aligner précisément. Il est possible avec ce logiciel de dessiner plusieurs couches sur un même dessin. Dans la structure présentée en A.6, il y a trois couches différentes. La première représentée en bleu constitue le dessin pour la première lithographie. Ce niveau inclue

les deux tailles de marques d'alignements, ainsi que le réseau de trait. La seconde couche est représentée en vert. Elle contient le dessin des guides plasmoniques ainsi que d'un réservoir. Enfin la dernière couche présente porte le nom de *layer 63* et est repérée en rouge (cf. figure A.6). Celle-ci est particulière, car elle est réservée par le logiciel et sert à la procédure d'alignement. Durant cette procédure, seule les zones repérées par cette couche seront insolées, et donc le reste de la résine sera préservée. Sur la figure A.6 (b) sont représentées en rouge et en orange les zones qui seront insolées durant la procédure d'alignement. Il est nécessaire de définir une origine du repère. Pour cela, une structure dite d'alignement sera intégralement insolée (cf. figure A.6 (c)). A partir de cette origine il est aisé de se déplacer sur l'échantillon car la distance entre les structures est une donnée connue de l'utilisateur. De plus cette structure va permettre de régler le faisceau d'électron avant de procéder à la lithographie.

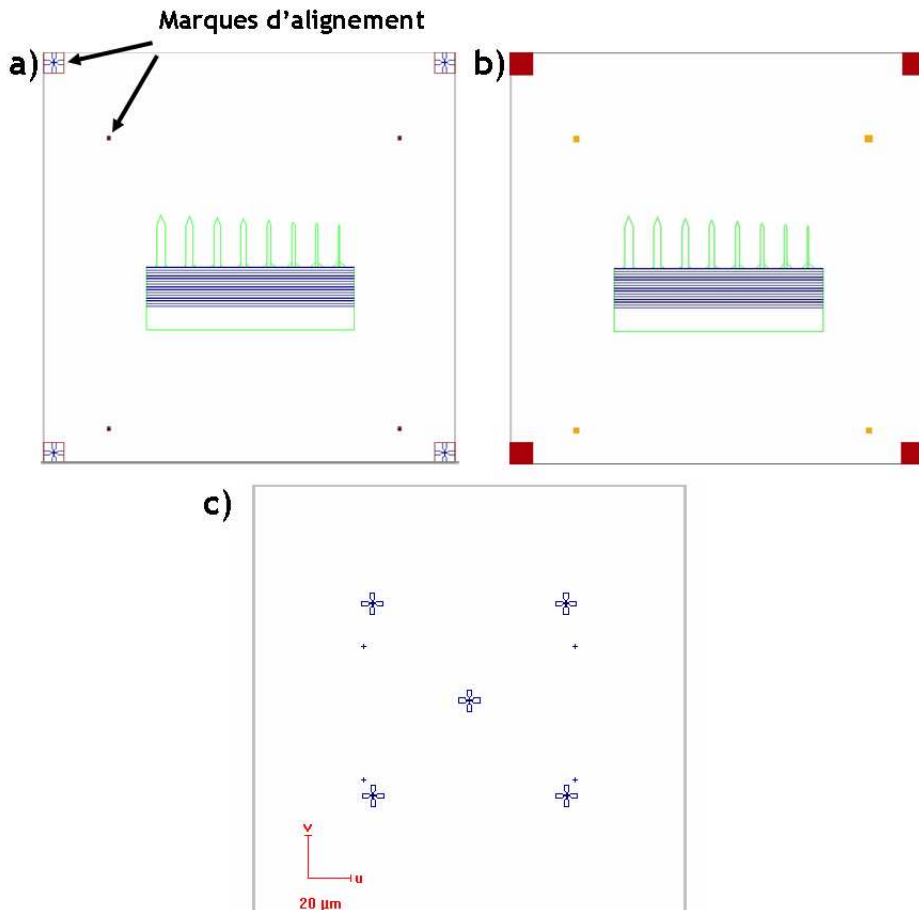


FIGURE A.6 – a) Image du design global. Les traits en bleu représentent le réseau. Les marques d'alignement sont de deux tailles différentes et sont aussi en bleu. En vert est représenté le motif pour la seconde lithographie qui représente les guides plasmoniques plus un réservoir. b) Les carrés en rouge représente le premier alignement sur les marques les plus grosses. En orange est représenté l'alignement fin. c) Structure d'alignement pour les lithographies multi-niveaux.

Procédure

Étape 1 : Lithographie du premier niveau suivant la même méthode que présenté à la section A.3. L'échantillon est composé de 20 structures dont 4 sont exclusivement réservées pour l'alignement. Elles sont repérées par le couple (m,n) avec m pour les lignes et n pour les colonnes (cf. figureA.7).

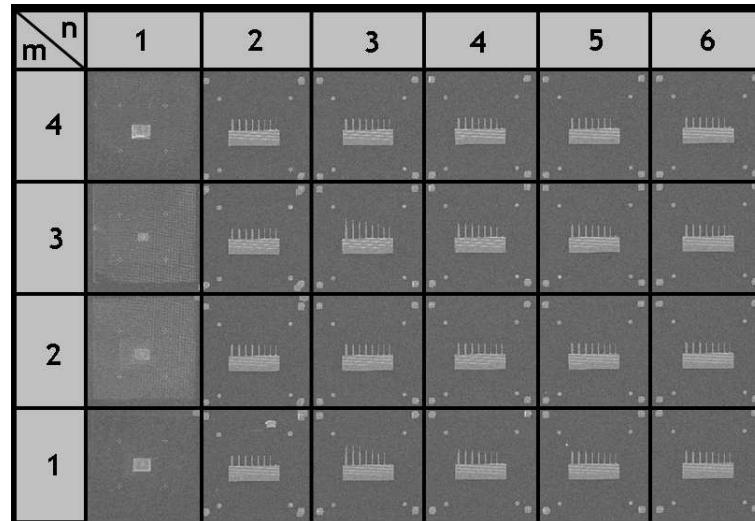


FIGURE A.7 – Vue globale de l'échantillon.

Étape 2 : Placer l'échantillon de façon à avoir la structure d'alignement repérer en (1,1) au centre de l'écran du MEB. A partir de là toute la procédure se déroule à l'aide du logiciel ELPHY.

Étape 3 : Une fois le contrôle pris par l'ordinateur de lithographie, il est nécessaire d'ajuster l'origine grâce au module n°4. A partir de là, les coordonnées U et V sont remis à 0. Il faut ensuite utiliser le module n°6 pour ajuster le grandissement à la taille de la fenêtre de travail. Dans ce cas, il s'agit d'une fenêtre de 200 μm de côté.

Étape 4 : En Utilisant le module n°1 il est possible de faire une image de la position (0,0). Cette étape permet de vérifier que la croix centrale se trouve bien au centre de l'image. Si cela n'est pas le cas, il suffit d'ajuster la position de la croix en utilisant le module n°2. Une fois l'image centrée, il faut refaire un ajustement d'origine en utilisant le module n°1. Il ne reste plus qu'à rentrer les coordonnées de la prochaine structure dans le module n°2 afin de se déplacer vers cette nouvelle zone. A partir de là, les structures ne seront plus observables et seules les marques d'alignements seront utilisées.

Étape 5 : La procédure d'alignement du logiciel ELPHY utilise la couche spécifique : *layer 63*. Dans la structure toutes les marques d'alignements ont été entourées par un cadre de correspondant à cette couche. Le logiciel ne permet que l'utilisation de 4 motifs de *layer 63* par dessin. Néanmoins, cette limitation peut être contournée en dupliquant la structure et en ne laissant à chaque fois que 4 *layer 63*. En utilisant l'onglet "Exposed layer" du module n°5, il est possible de choisir la ou les couches qui vont être insolées. Dans le cas de la procédure d'alignement, il est nécessaire de ne sélectionner que le *layer 63*, comme le montre la

figure A.8. L'insolation concernera la structure qui est ouverte, ou à défaut celle qui sera sélectionnée dans le module n°3. L'insolation ne prenant en compte que des aires, nous ajustons seulement les paramètres d'insolutions qui sont le "step-size" ou le "dwell-time". Une fois ceci effectué, il ne reste plus qu'à sélectionner "exposure" pour commencer l'insolation.

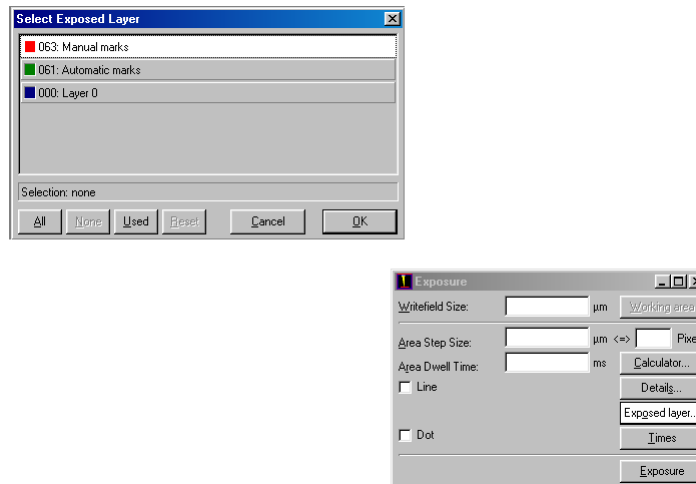


FIGURE A.8 – Module d'exposition du logiciel ELPHY

Étape 6 : Le système va générer une liste de position et insoler les structures de la couche sélectionnée les unes après les autres. Il les répertorie dans l'ordre de leur création. Il est préférable d'avoir une insolation circulaire. Il est donc nécessaire de vérifier l'ordre de création des motifs. Le système réalise une image de la première zone (cf. figure A.9 (a)). En maintenant le bouton "Ctrl" du clavier et le bouton gauche de la souris il est possible de redéfinir la position du centre. Le but du jeu étant de faire coïncider le centre de la croix d'alignement avec le centre de l'image (curseur vert) (cf. figure A.9 (b)). Cette procédure peut et doit être réalisée plusieurs fois. Pour une erreur de repositionnement relativement faible, nous utilisons différentes tailles de marques d'alignements. Avec au maximum trois tailles de croix, l'erreur obtenue est comprise entre 20 et 80 nm.

Étape 7 : Une fois l'alignement de la zone terminé, il ne reste plus qu'à sélectionner la couche comprenant les nouvelles structures à insoler (dans exemple il s'agit de la couche 1) grâce au module n°5. Il n'est pas nécessaire de désélectionner la couche d'alignement. Le résultat obtenu pour une structure avec cette méthode est présenté sur la figure A.10.

S'il y a plusieurs structures à insoler sur le même échantillon, il suffit de recommencer la procédure depuis l'étape 4. Une fois la lithographie terminée les étapes sont les mêmes que pour une lithographie par faisceau d'électron classique, à la différence que le développement se fait sans les ultrasons, pour notamment éviter de retirer les structures du premier niveau de lithographie.

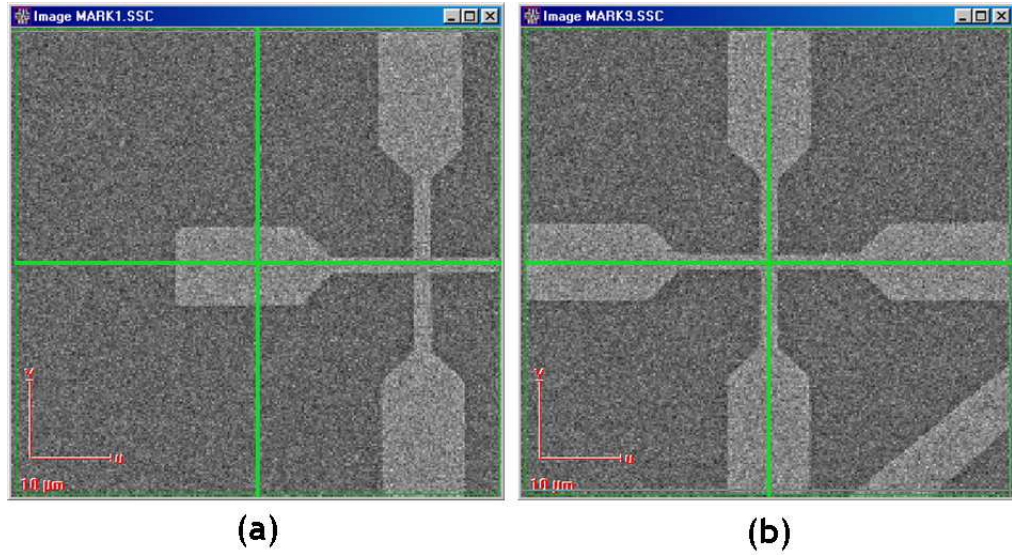


FIGURE A.9 – Image d’une marque d’alignement pendant le processus : a) non alignée, b) alignée après le processus d’alignement.

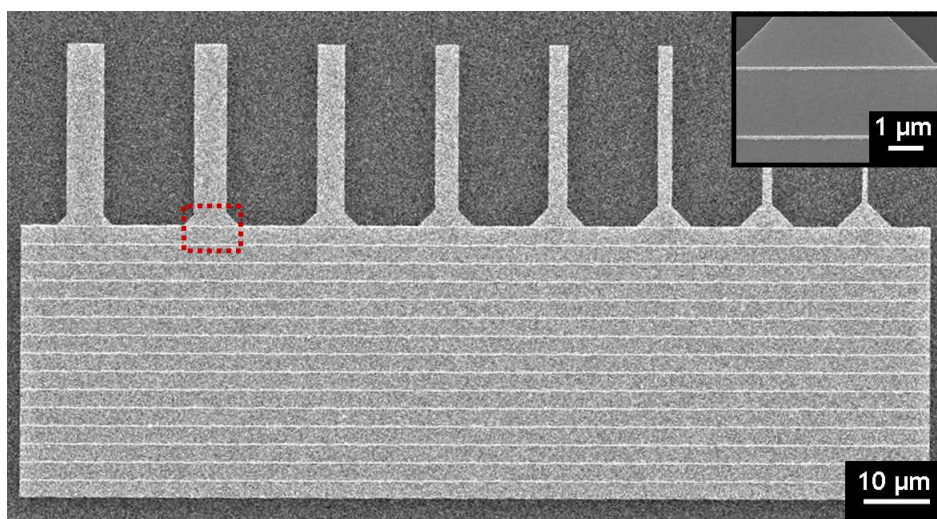


FIGURE A.10 – Image MEB du résultat de la structure finale

Liste de Publications

- 1- **Johann Berthelot** , Guillaume Bachelier, Padmnabh Rai, Gérard Colas des Francs, Alain Dereux and Alexandre Bouhelier ; “*Tailored second harmonic generation in strongly coupled optical gap antennas*” ; soumis à Physical Review Letters.
- 2- **Johann Berthelot** , Francesco Tantussi, Padmnabh Rai, Gérard Colas des Francs, Jean-Claude Weeber, Alain Dereux, Francesco Fuso, Maria Allegrini and Alexandre Bouhelier ; “*Determinant role of the edges in defining surface plasmon propagation in stripe waveguides and tapered concentrators*” ; soumis à Journal of the Optical Society America B.
- 3- Nicolai Hartmann, Giovanni Piredda, **Johann Berthelot** , Gérard Colas des Francs, Alexandre Bouhelier and Achim Hartschuh ; “*Launching Propagating Surface Plasmon Polaritons by a Single Emitter*” ; soumis à Nanoletters.
- 4- **Johann Berthelot** , Alexandre Bouhelier, Gérard Colas des Francs, Jean-Claude Weeber and Alain Dereux ; “*Excitation of a one-dimensional evanescent wave by conical edge diffraction of surface plasmon*” ; Optics Express 19, 5303 (2011)
- 5- Caijin Huang, Alexandre Bouhelier, **Johann Berthelot** , Gérard Colas des Francs, Eric Finot, Jean-Claude Weeber, Alain Dereux, Sergei Kostcheev, Anne-Laure Baudrion, Jérôme Plain, Renaud Bachelot, Pascal Royer, and Gary Wiederrecht ; “*External control of the scattering properties of a single optical nanoantenna*” ; Applied Physics Letters 96, 143116 (2010)
- 6- **Johann Berthelot** , Alexandre Bouhelier, Caijin Huang, Jérémie Margueritat, Gérard Colas des Francs, Eric Finot, Jean-Claude Weeber, Alain Dereux, Sergei Kostcheev, Hicham Ibn El Ahrach, Anne-Laure Baudrion, Jérôme Plain, Renaud Bachelot, Pascal Royer, Gary P. Wiederrecht ; “*Tuning of an Optical Dimer Nanoantenna by Electrically Controlling Its Load Impedance*” ; Nano Letters 9, 3914-3921 (2009)
Cité par Nature Photonics 4, 6-7 (2010)