



Transferts radiatifs de champ proche guidés : nanostructures à phonon-polaritons de surface

Laurent Tranchant

► To cite this version:

Laurent Tranchant. Transferts radiatifs de champ proche guidés : nanostructures à phonon-polaritons de surface. Micro et nanotechnologies/Microélectronique. Ecole Centrale Paris, 2015. Français. NNT : 2015ECAP0001 . tel-01141572

HAL Id: tel-01141572

<https://theses.hal.science/tel-01141572>

Submitted on 13 Apr 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

présentée par

Laurent TRANCHANT

pour l'obtention du

GRADE de DOCTEUR

Formation doctorale : Physique - Énergétique

Laboratoire d'accueil : Laboratoire d'Énergétique Moléculaire
et Macroscopique, Combustion (EM2C)
du CNRS et de l'ECP

Transferts radiatifs de champ proche guidés : nanostructures à phonon-polaritons de surface

Soutenue publiquement le 6 Janvier 2015

Jury :	MM.	VOLZ	S.	Directeur de thèse
		ANTONI	Th.	Co-Directeur de thèse
		JOULAIN	K.	Rapporteur
		KAZAN	M.	Rapporteur
		DE WILDE	Y.	Examineur
		GREFFET	J.-J.	Président
		DE SOUSA MENESES	D.	Examineur
		VAILLON	R.	Examineur
		MIYAZAKI	K.	Invité

École Centrale des Arts et Manufactures
Grand Établissement sous tutelle
du Ministère de l'Éducation Nationale
Grande Voie des Vignes
92295 Châtenay-Malabry CEDEX
Tél : 33 (1) 41 13 10 00
Télex : 634 991 F EC PARIS

**Laboratoire d'Énergétique
Moléculaire et Macroscopique,
Combustion (EM2C)**
UPR 288, CNRS et École Centrale Paris
Tél : 33 (1) 41 13 10 31
Fax : 33 (1) 47 02 80 35

2015 - ECAP0001

Jury - Jury - Jury - Jury - Jury - Jury - Jury

Remerciements

« *La reconnaissance est la mémoire du coeur.* »

Hans Christian Andersen

Lorsque je lisais des manuscrits de thèse, je regardais toujours brièvement les remerciements de l'auteur afin d'avoir une idée des difficultés qu'il avait rencontrées et du soutien qu'il avait reçu. Cela me donnait le moral devant l'immensité du travail qu'il me restait à accomplir : malgré les nombreux moments de réflexion solitaire nécessaire au travail de recherche, un suivi régulier de la part des encadrants, de la famille, des amis ainsi que de nombreuses rencontres, parfois fortuites, jalonnent ce travail de trois ans et contribuent très fortement à son succès. Maintenant à mon tour de formuler ma reconnaissance à tous ceux qui, de près ou de loin, m'ont accompagné dans ce chemin particulier qu'est la thèse, premiers pas de chercheur, et d'adresser tous mes vœux de courage, d'obstination et de réussite aux doctorants qui liront mon manuscrit.

Je remercie tout d'abord tous les membres du jury, à savoir Messieurs Jean-Jacques Greffet, Domingos de Sousa Meneses, Rodolphe Vaillon et Yannick De Wilde, d'avoir accepté de lire ma thèse pendant les vacances de Noël et d'assister à ma soutenance prévue peu de temps après la rentrée malgré la fin d'année très chargée et la quête d'un peu de repos légitime pendant cette période. Je remercie Jean-Jacques Greffet d'avoir en plus accepté d'être président du jury. J'ai aussi été très honoré de la présence de Monsieur Koji Miyazaki, qui a fait le voyage depuis Kita-Kyushu au Japon pour assister à ma soutenance. Je voudrais exprimer ma profonde reconnaissance à mes rapporteurs, Messieurs Karl Joulain et Michel Kazan, qui ont accepté de lire mon manuscrit et d'écrire leur rapport en un temps record me permettant de tenir les délais très serrés.

Je remercie bien évidemment mes encadrants de thèse : Sebastian Volz et Thomas Antoni. Sebastian m'a suivi dès le début et n'a cessé de m'encourager et de me donner des conseils scientifiques et pédagogiques tout en me laissant une grande marge de liberté dans mes recherches. Il a favorisé ma curiosité au travers des nombreuses conférences auxquelles j'ai pu assister et grâce aux nombreux chercheurs invités au laboratoire qui m'ont aidé et ont enrichi mon travail. Thomas n'est arrivé qu'à la fin de ma première année de thèse mais il a su très vite cerner les originalités et les difficultés du sujet et m'a permis

d'organiser mon travail expérimental en vue d'une nouvelle expérience dans une équipe de recherche récemment constituée. Son soutien constant tout au long des deux années m'a été très précieux surtout dans les moments de doute, son aide dans la mise en place et l'interprétation des résultats numériques a été indispensable. Enfin, je voudrais aussi remercier plus particulièrement Jose-Ediberto Ordonez-Miranda de l'équipe de recherche d'avoir su reprendre le relai de mes travaux théoriques préliminaires à la fin de ma première année de thèse et d'avoir su les rendre plus consistants, ce qui a permis la publication de nombreux papiers sur le sujet. Grâce à lui l'étude théorique menée dans le troisième chapitre a été très détaillée.

De fait ce travail de thèse est le fruit de collaborations multiples qu'il convient de mentionner ici. Tout d'abord Beomjoon Kim de l'université de Tokyo qui m'a accueilli une dizaine de jours dans son laboratoire, me permettant de rapporter quelques échantillons en France. Au laboratoire nous avons accueilli deux professeurs Michel Kazan et Bong-Jae Lee qui ont accepté de participer à mes recherches, ce dont je les remercie vivement. Michel m'a appris beaucoup de petits trucs d'expérimentateurs pour réussir un bon montage d'optique, notamment de rester toujours patient et de bonne humeur ! Bong-Jae nous a initiés, Jose et moi, à DDSCAT, afin de mieux comprendre les propriétés radiatives des structures micrométriques dont nous mesurons expérimentalement l'émission. Je remercie aussi les équipes qui m'ont accueilli pendant une après-midi ou quelques jours pour diverses expériences ou des discussions très fructueuses, notamment Domingos de Sousa Meneses et Patrick Etchegut au laboratoire CEMHTI à Orléans pour y réaliser des mesures de référence et François Marquier à l'Institut d'optique à Palaiseau. Je voudrais aussi exprimer ma profonde reconnaissance à Bruno Beccard et Christian Andasse de Thermo Fisher Scientific, d'avoir suivi les problèmes d'utilisation du spectromètre et du microscope IR et permis d'améliorer le montage notamment en réflexion. Monsieur Beccard m'a beaucoup aidé dans la compréhension théorique et technique des deux appareils, ce qui m'a très souvent permis de sortir de situations de blocage.

La bonne ambiance qui régnait constamment au sein du laboratoire m'a aussi beaucoup aidé durant ces trois années. Je tiens à remercier l'ensemble de l'équipe nano-thermique à l'EM2C à savoir Yann Chalopin, Yurii Ciumacov, Alex Pokropyvnyy, Yuriy Kosevich, Traian Dumitrica et Konstantinos Termentzidis ainsi que tous les doctorants (dont certains sont docteurs à l'heure où j'écris ces lignes) Yuxiang Ni, Shiyun Xiong, Aymeric Ramière, Kimmo Sääskilähti, Kyle Horne, Juliana Jaramillo, Wassim Kassem, Benoît Latour, Jordane Soussi, Haoxue Han, Sergei Gluchko et Lantao Yu. J'adresse mes encouragements plus particuliers à Sergei qui reprend en partie ces travaux de recherche. J'en profite aussi pour remercier le personnel technique et administratif du laboratoire EM2C : Anne-Cécile Aiach, Brigitte Llobel, Virginie Jeunon-Martinez et Nathalie Rodrigues pour m'avoir aidé dans toutes les démarches administratives en dépit de leurs nombreuses autres sollicitations, Erika Jean-Bart, Yannick Le Teno, Sid Bouamama, David Charalampous et Jérôme Beaunier pour

leurs conseils avisés sur la partie technique et la fabrication de pièces ou de tables d'expérience afin d'obtenir une salle d'expérience opérationnelle. Merci aussi à Sébastien Turgis (et avant lui, à Jordane Marescaux) pour les résolutions de mes (nombreux) problèmes informatiques. Je voudrais aussi exprimer ma reconnaissance aux gens de l'école doctorale avec lesquels j'ai pu beaucoup échanger notamment *via* l'Union des Jeunes Chercheurs de l'École Centrale (UJ2CP) : Catherine Lhopital, Géraldine Carbonel, Emmanuelle Coplo et bien sûr le directeur de l'ED Benoît Goyeau.

J'en arrive aux doctorants et post-doctorants de l'EM2C (où il n'y a pas que l'équipe nano-thermique !) avec qui j'ai passé trois très belles années ponctuées de discussions sérieuses et, heureusement, d'autres un peu moins (à base de défaites au jeu par exemple...). Je vais citer, dans le désordre : Adrien Lemaal, Megan MacDonald, Carolyn Jacobs, Aurélien Guy, Vincent Leroy, Diana Tudorache, Sorour Refahi, François Péchereau, Clément Mirat, Jean-François Bourgouin, Raphaël Beaudouin, Florent Saint, Diane Rustherholtz-Duval, Aymeric Vié, Benedetta Franzelli, Pierre-Édouard Bossard, Benoît Cheneau, Yann Dauvois, Nicolas Dumont, Manuel Gonzalez-Flesca, Thibault Guiberti, Chai Koren, Marek Mazur, Gilles Bailet, Benjamin Robbes, Gizem Okay, Erwann Pannier (Sauce-man), Maxime Philip, Antoine Renaud, Macole Sabat, Pedro Stefanin-Volpiani, Wenjie Tao et Marie Zarrouati. Je n'oublie pas les membres du bureau de l'UJ2CP qui ont fait équipe avec moi : Göknur Sirin, Ana Gaspar et Romain Faye. Bien sûr je garde une dédicace particulière à mes co-bureaux : François Doisneau, Fabien Tholin au début puis Kevin Prieur (Bichette) et Sylvain Heitz à la fin ainsi que Marien Simeni-Simeni (dit le Bien Nommé) qui y a été du début à la fin (je perds au jeu en vous remerciant et je laisse tourner ceux qui se sentiront concernés). J'en profite aussi pour adresser mes remerciements plus informels à Nyan Cat, Monsieur Trololo, Alice Cooper (quel poison !), Rammstein et aux vendéens d'avoir su alléger temporairement le sérieux de nos discussions.

Je remercie aussi mes parents qui m'ont toujours soutenu malgré les épreuves (en particulier ma mère qui a relu tout ce manuscrit pour traquer les fautes d'orthographe), ainsi que mes frères et soeurs et le reste de ma famille. Tous mes cercles d'amis que ce soit du lycée, des scouts ou de Centrale Lyon m'ont tous aidé, à leur manière, à surmonter les difficultés, en m'écoutant et en me changeant les idées. Une grande partie est venue me soutenir le jour du grand oral, les autres m'ont envoyé leurs ondes positives. Un grand merci à tous.

Bien entendu la liste des remerciements est très longue, néanmoins j'ai sûrement oublié d'autres personnes. Je m'en excuse par avance, mais tous savent qu'ils ont eu une influence directe ou indirecte sur cette thèse et je les en remercie.

Abstract

Miniaturization of transistors, whose sizes reach a few tens of nanometers nowadays, implies new problems of heat control at very short scales. This big challenge among others enabled the emergence of nanoscale heat transfer as a new research domain. Near-field heat transfer is one of the axis of this thematic. It concerns the behavior of thermal waves at a scale shorter than their wavelengths. Under these conditions the waves with the highest energy density are evanescent, that is confined at the surface. Surface phonon-polariton (SPhP) is a particular case of an evanescent wave propagating at the surface of a polar dielectric material. This PhD work consists in examining SPhP propagation along the surface of micrometric glass tubes and in proving the ability of these waves to enhance heat transfer in these systems.

A theoretical analysis has been carried out to justify the use of such heat waveguides whose thermal conductivity can be doubled due to SPhP. The experimental detection of those waves based on their diffraction at the tip of the glass tubes is then presented. This emission is measured thanks to the assembly of a microscope and a Fourier-transform IR spectrometer. The presence of SPhPs is proved through measured spectra exhibiting their characteristic spectral signature.

Résumé

La miniaturisation des transistors atteignant aujourd'hui des tailles de l'ordre de la dizaine de nanomètres a introduit des problèmes de contrôle de la chaleur aux courtes échelles. Ce défi industriel, parmi d'autres, a permis l'émergence de l'étude des transferts thermiques à l'échelle nanométrique. Un des axes de recherche de cette thématique concerne le rayonnement de champ proche. Il s'agit de comprendre le comportement des ondes thermiques sur des distances inférieures à leur longueur d'onde. A cette échelle les ondes contenant la densité énergétique la plus importante sont des ondes évanescentes, confinées en surface. Le phonon-polariton de surface (PPS) en est un type : c'est une onde évanescente se propageant à la surface de matériaux polaires et diélectriques. L'objectif de ce travail de thèse est d'examiner la propagation de PPS le long de la surface de tubes de verre micrométriques, et de montrer en quoi cette géométrie favorise le transfert de chaleur par le biais de ces ondes.

Une étude théorique a été menée pour justifier l'utilisation de ce guide d'ondes de chaleur dont la conductivité thermique peut être jusqu'à doublée grâce aux PPS. La présence des PPS est ensuite détectée expérimentalement. En effet la diffraction de ces ondes à la pointe du tube est décelée par un ensemble microscope-spectromètre à transformée de Fourier IR. Le spectre du rayonnement obtenu prouve la diffraction de PPS grâce à leurs signatures spectrales spécifiques.

Table des matières

Abstract	vii
Résumé	ix
Introduction Générale	1
I Étude théorique du rayonnement de champ proche	3
1 Introduction au rayonnement de champ proche	5
1.1 Les principaux défis industriels impliquant le transfert thermique à l'échelle micro/nanométrique	6
1.1.1 Le refroidissement des composants électroniques	6
1.1.2 Les matériaux thermoélectriques	7
1.1.3 Les cellules thermophotovoltaïques	9
1.1.4 La diffusion thermique de nanoparticules à des fins thérapeutiques	11
1.2 Les transferts thermiques de l'échelle macroscopique à l'échelle nanométrique	15
1.2.1 Interprétation physique des phénomènes mis en jeu . . .	15
1.2.2 Modification des modèles utilisés	17
1.2.3 Le rayonnement de champ proche	19
1.3 Applications du rayonnement de champ proche	21
1.3.1 Modifications des propriétés d'émission-absorption de matériaux	21
1.3.2 Le refroidissement sans contact	25
1.3.3 La conception de rectificateur thermique	26
1.3.4 Les cellules thermophotovoltaïques de champ proche . .	29
1.3.5 L'imagerie thermique de champ proche	32
1.3.6 L'écriture des données informatiques assistée par rayonnement thermique	34
1.4 Mise au point d'un guide d'ondes de chaleur : stratégie et démarche générale du travail de thèse	38

2	Définition du phonon-polariton de surface	41
2.1	Définition et interprétation physique	41
2.1.1	Le premier acteur : le phonon	41
2.1.2	Le deuxième acteur : le photon donnant naissance au polariton	44
2.1.3	Le couplage phonon-photon dans la bande interdite du polariton de volume : le phonon-polariton de surface . .	48
2.2	Relation de dispersion et conditions d'existence	51
2.2.1	Constante diélectrique réelle ou faiblement complexe . .	52
2.2.2	Constante diélectrique complexe	54
3	Propagation du phonon-polariton de surface en géométrie plane et cylindrique	65
3.1	Modèle utilisé pour la conductivité thermique	65
3.2	Relations de dispersion	67
3.2.1	Couche mince	68
3.2.2	Tube	76
3.3	Répartition de l'énergie : vecteur de Poynting	82
3.4	Conductivité thermique	85
3.4.1	Conductivité thermique de la couche mince	85
3.4.2	Conductivité thermique du tube	88
3.5	Quantification du transport de chaleur par PPS	89
3.5.1	Contexte de la quantification du transport thermique . .	90
3.5.2	Modélisation de la conductance thermique par le formalisme de Landauer	91
3.5.3	Caractéristiques du PPS appliquées à la conductance thermique	94
3.5.4	Quantification du transfert de chaleur de nanofils de SiC et de SiO ₂	96
II	Étude expérimentale	103
4	Détection expérimentale du PPS	105
4.1	Démonstration expérimentale du PPS	105
4.1.1	La réflexion totale atténuée	106
4.1.2	La microscopie optique de champ proche	109
4.1.3	La microstructuration de surface	112
4.1.4	Diffraction par la pointe d'un tube	115
4.2	Simulations FDTD	117
4.2.1	Diffraction d'une couche mince	120
4.2.2	Diffraction de la pointe d'un tube	123
4.2.3	Ouverture angulaire de la diffraction du PPS	127
4.3	Montage expérimental	128

4.3.1	Fabrication des échantillons	128
4.3.2	Le détecteur MCT	131
4.3.3	Le spectromètre à transformée de Fourier infrarouge . . .	134
4.3.4	Le microscope infrarouge	135
5	La micro-spectroscopie IR adaptée à l'émission thermique	141
5.1	Principe général de mesure de l'émissivité	141
5.2	Quelques artefacts de mesure	143
5.2.1	La soustraction du rayonnement ambiant	143
5.2.2	Effet du chauffage des optiques	148
5.2.3	Influence de l'objectif	151
5.2.4	Influence du diaphragme	152
5.2.5	Non-linéarité du détecteur	154
5.3	Procédure d'étalonnage à l'aide d'échantillons de référence . . .	156
5.3.1	Mesure de la température de surface de l'échantillon par pyrométrie bichromatique	158
5.3.2	Mesure de la température de surface de l'échantillon par thermocouple	163
5.3.3	Obtention de la fonction de transfert pour des échan- tillons de verre sodocalcique et de verre de quartz	167
6	Résultats expérimentaux	171
6.1	Mesure de la constante diélectrique par réflexion IR	171
6.1.1	Démarche du calcul de la constante diélectrique	171
6.1.2	Permittivité diélectrique déterminée pour des échantillons de verre plans	175
6.1.3	Permittivité diélectrique déterminée pour un tube en verre borosilicate	178
6.2	Mesure de l'émission du tube en verre	180
6.2.1	Choix des caractéristiques de l'échantillon	180
6.2.2	Méthode de chauffage du tube en verre	182
6.2.3	Détection de l'émission du tube	183
6.3	Estimation numérique de la section efficace d'absorption du mi- crotube	190
	Conclusion	195

Liste des tableaux

5.1	Mesures de la température de la plaque chauffante. Ces mesures servent d'étape de validation de la procédure car elles sont redondantes avec le contrôleur.	166
5.2	Mesures de la température des échantillons de verre sodocalcique et de quartz.	166

Table des figures

1.1	Évolution de la TDP en fonction de la fréquence de fonctionnement. La tendance de plusieurs classes de microprocesseurs Intel est représentée. L'augmentation du TDP diminue grâce à la technologie de processeurs à multicœurs (figure reprise de la référence [71]).	7
1.2	Exemples de systèmes thermoélectriques : à gauche pour le refroidissement d'un matériau et à droite pour la génération de puissance électrique à partir de deux sources froide et chaude. Les matériaux thermoélectriques de type p possèdent des porteurs de chaleur majoritairement sous forme de trous alors que pour ceux de type n ce sont des électrons.	8
1.3	État de l'art des facteurs de mérite de différents matériaux nanostructurés ou non en fonction de la température. La limite de facteur de mérite égal à 1 pour les matériaux à l'état naturel est illustrée par la ligne en pointillés horizontale (figure reprise de la référence [77]).	9
1.4	Schéma de principe d'une cellule PV et d'une cellule TPV. La cellule PV convertit directement le rayonnement solaire en électricité tandis que la cellule TPV contient un système absorbeur-émetteur. Il permet d'absorber le rayonnement incident, ce qui va augmenter sa température, et ensuite de réémettre ce rayonnement vers le récepteur PV. Le soleil peut être remplacé par n'importe quelle source chaude pour une cellule TPV ([figure reprise de la référence [37]).	10
1.5	Ciblage actif de cellules cancéreuses par une nanoparticule d'or fonctionnalisée grâce à des anticorps adaptés à sa surface. . . .	12
1.6	Mécanismes de pertes magnétiques : a) le cycle d'hysteresis induisant l'inversion de l'aimantation des domaines magnétiques provoque une dissipation de chaleur, b) et c) relaxations de Néel et de Brown pour lesquelles l'inversion magnétique est freinée par l'anisotropie du milieu (Néel) ou par la viscosité du milieu environnant (Brown).	14
1.7	Mécanisme de convection naturelle de l'air dans une pièce. . . .	16

1.8	Deux demi-plans infinis séparés à deux températures différentes T1 et T2 par du vide d'épaisseur d.	17
1.9	Schéma des différents types d'ondes émanant d'un milieu : a) ondes propagatives transmises à l'interface alors que b) et c) correspondent au cas des ondes évanescentes non transmises. Le cas b représente les ondes évanescentes résultant de réflexions limites alors que le cas c illustre les ondes de surface.	20
1.10	Densité d'énergie calculée pour trois hauteurs différentes au-dessus d'une surface de silice amorphe à 300 K dans le vide. L'augmentation de la densité d'énergie est due à la contribution croissante du rayonnement de champ proche (figure reprise de la référence [115]).	22
1.11	(a) Refroidisseur radiatif composé de deux cristaux photoniques l'un en quartz et l'autre en SiC en dessous duquel est placé un réflecteur solaire large bande. Ce réflecteur est conçu avec cinq bicouches faites en MgF_2 et TiO_2 de périodes non constantes. Le tout repose sur un substrat d'argent. (b) Tracé de l'émissivité normale de la structure qui montre une faible absorption du rayonnement solaire représenté en orange pour une émission très forte dans la gamme de transparence atmosphérique représentée en indigo (figure reprise de la référence [100]).	23
1.12	Système d'absorbeur modulé fondé sur l'effet epsilon proche de zéro : le système est constitué d'un réseau d'or posé sur un puits quantique en GaAs séparé de deux barrières en AlGaAs. Le tout repose sur une couche d'AlGaAs (de composition différente de l'alliage utilisé pour le puits quantique) reposant elle aussi sur un substrat en GaAs dopé (figure reprise de la référence [113]).	24
1.13	(a) Montage expérimental de la mesure du transfert radiatif entre deux plans de saphir. L'échantillon chaud a sa température contrôlée par une boucle de rétroaction, la puissance nécessaire pour maintenir une différence de température constante entre les deux plans fournit la mesure du coefficient de transfert thermique. Des moteurs pas-à-pas sont utilisés pour ajuster l'alignement et l'écartement des saphirs. (b) Tracé du coefficient de transfert thermique en fonction de la distance. Les points expérimentaux sont donnés avec les barres d'erreur. Les lignes continues représentent les prédictions théoriques de l'expérience pour des surfaces parfaitement planes, tandis que les lignes en pointillés incluent des surfaces légèrement courbes afin de tenir compte des défauts expérimentaux (figures reprises de la référence [89]).	26

1.14	(a) Schéma de principe des points de fonctionnement d'une diode thermique (P pour diode passante et B pour diode bloquante) : les traits en pointillés correspondent aux variations de la fréquence de résonance des ondes de surface pour un même matériau en fonction de la température. Les traits pleins correspondent aux températures de fonctionnement. La diode est passante lorsque les fréquences de résonance des ondes de surface des deux matériaux sont identiques ou très proches, elle est bloquante lorsque les fréquences diffèrent. (b) Recouvrement des émissivités des deux matériaux dans le cas idéal de diode passante (cas idéal : émissivité maximale aux fréquences de résonance et nulle ailleurs). (c) Non recouvrement des émissivités dans le cas idéal de diode bloquante.	28
1.15	(a) Schéma de principe d'un transistor électronique constitué d'une source, d'un drain et d'une porte. Le courant passe de la source vers le drain et il est bloqué lorsque l'on applique une tension aux bornes de la porte. (b) Transistor thermique composé d'une source et d'un drain en silice entre lesquels est placée à une distance submicrométrique une couche d'un matériau à changement de phase jouant le rôle de porte. Lorsqu'un flux de chaleur suffisant est imposé à la porte, celle-ci isole thermiquement la source et le drain (figures reprises de la référence [8]).	29
1.16	Schéma de principe d'une cellule TPV nanophotonique. La lumière du soleil est convertie en rayonnement thermique avant d'être transformée en énergie électrique grâce au système émetteur-absorbeur.	31
1.17	(a) Schéma expérimental du microscope thermique de champ proche. La pointe diffracte le champ proche en champ lointain vers le détecteur. Ses oscillations modulent le signal utile qui sera récupéré via une détection synchrone (figure reprise de la référence [31]). (b) Pointe de microscope thermique de champ proche amélioré par Kittel et al.. Un thermocouple entre la surface d'or et la pointe de platine permet de mesurer le transfert thermique.	34
1.18	Montage expérimental d'imagerie de champ proche où l'échantillon avec la pointe est placé dans un bras de l'interféromètre de Michelson (figure reprise de la référence [51]).	35
1.19	Tracé de principe du champ coercitif en fonction de la température. L'élévation de la température du matériau magnétique permet de diminuer le champ coercitif et ainsi de procéder à l'écriture de données sans devoir augmenter le champ magnétique émis par la tête d'écriture.	36

1.20	Montage expérimental d'écriture de données assistée par rayonnement de champ proche. Le rayonnement laser incident est couplé via un réseau à un transducteur de champ proche (noté NFT dans le schéma pour near-field transducer). Ce transducteur permet de chauffer localement la couche mince magnétique avant que celle-ci ne subisse le champ magnétique de la tête d'écriture suivant immédiatement le transducteur (figure reprise de la référence 18).	37
1.21	Schéma de principe du guide d'ondes de chaleur.	39
2.1	L'approximation harmonique du cristal monoatomique unidimensionnel est illustrée par une chaîne d'atomes de masse M reliés par des ressorts parfaits de raideur K . La position à l'équilibre de chaque atome est un multiple du paramètre de maille a	42
2.2	Courbe de dispersion des phonons d'un cristal monoatomique en ne prenant en compte que les interactions avec les plus proches voisins.	43
2.3	Chaîne d'oscillateurs diatomiques avec des atomes de masse identique mais des ressorts de raideurs différentes. Les positions d'équilibre des atomes sont na et $na+d$	44
2.4	Courbe de dispersion des phonons dans un cristal diatomique. La branche inférieure (acoustique) est similaire à celle du cristal monoatomique, la branche supérieure est celle des phonons optiques.	44
2.5	Schéma de phonons optique et acoustique se propageant dans un cristal ionique pour une polarisation transverse. Le mouvement en opposition de phase des ions de charge opposée du phonon optique permet à celui-ci d'être excité par un rayonnement électromagnétique incident.	45
2.6	Schéma de phonons transverse et longitudinal optiques. Les signes plus et moins représentent les barycentres des charges positives et négatives respectivement. Les vibrations des dipôles sont perpendiculaires au vecteur d'onde dans le cas du phonon transverse alors qu'ils sont parallèles à celui-ci quand le phonon est longitudinal. Le champ électrique ainsi créé n'aura pas la même direction.	46
2.7	Représentation de la constante diélectrique du carbure de silicium en fonction de la fréquence en négligeant les pertes. Les fréquences ω_T et ω_L sont mises en évidence et vérifient bien les conditions $\epsilon = \infty$ et $\epsilon = 0$. Les lignes rouges verticales correspondent à $\omega_T = 14,93 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ et à $\omega_L = 18,24 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$	47

2.8	Tracé de la relation de dispersion du phonon-polariton dans le cas du carbure de silicium. Une bande interdite apparaît entre les fréquences ω_T et ω_L pour lesquelles il n'existe pas de phonon-polariton de volume. Le couplage photon-phonon présente un comportement très proche d'un phonon optique au voisinage des fréquences ω_T et ω_L où la relation de dispersion est plate. Par contre il se rapproche d'un photon lorsque celle-ci devient linéaire en se rapprochant d'une des deux lignes de lumière en pointillés. Cette différence de comportement très tranchée a poussé certains chercheurs à appeler polaritons les zones courbes où les modes sont de natures mixtes [3].	49
2.9	Réflexivité du carbure de silicium en fonction de la fréquence. La bande interdite du phonon-polariton de volume correspond à une zone de fréquence où la réflectivité du matériau est maximale. Le rayonnement électromagnétique incident reste confiné en surface favorisant le développement de PPS.	50
2.10	(a) Schéma de la propagation d'une onde plane correspondant à un phonon transverse optique dans le milieu 2. L'onde se propage suivant l'axe $\mathbf{x}$ tandis que la polarisation est orientée selon l'axe $\mathbf{y}$. (b) Schéma de la densité de charges surfaciques avec les lignes de courant du champ électrique associé lors de l'ajout de l'interface avec le milieu 1.	51
2.11	Schéma illustratif du PPS résultant du couplage entre des phonons optiques et des photons modélisés par des dipôles oscillants émettant un champ électromagnétique. Cette résonance de surface crée une onde évanescente s'atténuant dans les 3 directions de l'espace.	52
2.12	Schéma de la propagation d'un PPS à l'interface entre un milieu dispersif 2 et un milieu non dispersif 1.	53
2.13	Courbe de dispersion du PPS à l'interface SiC/air en prenant le vecteur d'onde β complexe ($\beta = \beta' - i\beta''$).	55
2.14	Courbe de dispersion du PPS à l'interface SiC/air en prenant la fréquence ω complexe ($\omega = \omega' - i\omega''$).	56
2.15	Parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique relative de SiC $\epsilon = \epsilon' - i\epsilon''$. Cette constante a été calculée à partir de la formule théorique $\epsilon = \epsilon_\infty \left(1 + \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2 + i\Gamma\omega}\right)$ avec les données expérimentales ajustées de Spitzer, Kleinman et Walsh [108] $\epsilon_\infty = 6,7$, $\omega_T = 14,93.10^{13}$ rad.s ⁻¹ , $\omega_L = 18,24.10^{13}$ rad.s ⁻¹ et $\Gamma = 8,96.10^{11}$ rad.s ⁻¹	58
2.16	Courbe de dispersion du PPS se propageant sur une surface plane de SiC. Les cônes de lumière de l'air et du SiC correspondent respectivement aux conditions (2.39) et (2.40).	59

2.17	Courbe de dispersion du PPS se propageant sur une surface plane de SiC. Les conditions 1 et 2 correspondent respectivement aux conditions (2.37) et (2.38). Lorsque la courbe du PPS se confond avec une des deux autres, l'onde résultante perd son caractère évanescent.	60
2.18	Évolution de la composante réelle du vecteur d'onde transverse p' dans l'air (p_1) et dans le SiC (p_2).	60
2.19	Tracé des parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique du verre (SiO_2). Ces courbes ont pu être tracées grâce aux données expérimentales recueillies par <i>Palik</i> [91].	61
2.20	Courbe de dispersion du PPS se propageant sur une surface plane en verre. Les cônes de lumière de l'air et du verre correspondent respectivement aux conditions (2.39) et (2.40).	62
2.21	Courbe de dispersion du PPS se propageant sur une surface plane en verre. Les conditions 1 et 2 correspondent respectivement aux conditions (2.37) et (2.38). Lorsque la courbe du PPS se confond avec une des deux autres, l'onde résultante perd son caractère évanescent.	62
2.22	Évolution de la composante réelle du vecteur d'onde transverse p' dans l'air (p_1) et dans le verre (p_2).	63
3.1	Section de la couche mince étudiée de permittivité diélectrique ϵ_2 entourée de milieux de permittivités diélectriques ϵ_1 et ϵ_3 . . .	66
3.2	Section circulaire du tube étudié de permittivité diélectrique ϵ_2 entourée de milieux de permittivités diélectriques ϵ_1 et ϵ_3	67
3.3	Relation de dispersion du PPS pour une couche mince de verre suspendue dans l'air ($\epsilon_1 = \epsilon_3 = 1$) ayant trois épaisseurs $d = 0, 1 - 1$ et $3 \mu\text{m}$ et dans le cas d'une interface simple.	71
3.4	Longueur de propagation du PPS pour une couche mince de verre suspendue dans l'air ($\epsilon_1 = \epsilon_3 = 1$) ayant trois épaisseurs $d = 0, 1 - 1$ et $3 \mu\text{m}$ et dans le cas d'une interface simple. . . .	72
3.5	Relation de dispersion du PPS pour une couche mince de verre déposée sur du KBr ($\epsilon_1 = 1, 24$) en contact avec de l'air ($\epsilon_3 = 1$) ayant trois épaisseurs $d = 105 - 200$ et 300 nm et dans le cas d'une interface simple.	75
3.6	Longueur de propagation du PPS pour une couche mince de verre déposée sur du KBr ($\epsilon_1 = 1, 24$) en contact avec de l'air ($\epsilon_3 = 1$) ayant trois épaisseurs $d = 105 - 200$ et 300 nm et dans le cas d'une interface simple.	75
3.7	Relation de dispersion du PPS pour un tube de verre dans l'air. Les calculs ont été réalisés pour les trois premiers modes azimutaux avec une géométrie fixée à $a/b = 0, 9$ et pour un fil de rayon $a = 200 \text{ nm}$	79

3.8	Longueur de propagation du PPS en fonction de la fréquence pour un tube de verre dans l'air. Les calculs ont été réalisés pour les trois premiers modes azimutaux avec une géométrie fixée à $a/b = 0,9$ et pour un fil de rayon $a = 200$ nm.	79
3.9	Relation de dispersion du PPS pour un tube de verre dans l'air. Les calculs ont été réalisés pour le premier mode azimutal ($n = 1$) avec une géométrie a/b variant de $0,1$ à $0,9$ et pour un fil de rayon $a = 200$ nm.	80
3.10	Longueur de propagation du PPS en fonction de la fréquence pour un tube de verre dans l'air. Les calculs ont été réalisés pour le premier mode azimutal ($n = 1$) avec une géométrie a/b variant de $0,1$ à $0,9$ et pour un fil de rayon $a = 200$ nm.	81
3.11	Relation de dispersion du PPS pour un tube de verre déposé sur un fil de KBr ($\epsilon_1 = 1,24$) et entouré d'air ($\epsilon_3 = 1$). Les calculs ont été réalisés pour les trois premiers modes azimutaux avec une géométrie fixée à $a/b = 0,9$ et pour un fil de rayon $a = 200$ nm.	82
3.12	Longueur de propagation du PPS en fonction de la fréquence pour un tube de verre déposé sur un fil de KBr ($\epsilon_1 = 1,24$) et entouré d'air ($\epsilon_3 = 1$). Les calculs ont été réalisés pour les trois premiers modes azimutaux avec une géométrie fixée à $a/b = 0,9$ et pour un fil de rayon $a = 200$ nm.	83
3.13	Distribution du vecteur de Poynting à $x = 0$ pour une couche mince de verre d'épaisseur $d = 105$ nm. Les lignes continues correspondent au cas asymétrique tandis que celles en pointillés correspondent au cas symétrique.	84
3.14	Distribution du vecteur de Poynting du premier mode azimutal ($n = 1$) selon l'axe du tube à $x = 0$ pour une demi-section d'un tube de verre avec un rapport $a/b = 0,9$. La paroi de verre se trouve entre les rayons $r = 0,09 \mu\text{m}$ et $r = 0,10 \mu\text{m}$, le reste étant de l'air.	85
3.15	Spectre de la conductivité thermique pour une couche mince de SiO_2 suspendue dans l'air d'épaisseur $d = 100$ nm et pour trois températures $T = 300$ K, 500 K et 700 K.	86
3.16	Conductivité thermique cumulée pour une couche mince de SiO_2 suspendue dans l'air d'épaisseur $d = 100$ nm et pour trois températures $T = 300$ K, 500 K et 700 K.	87
3.17	Tracé de la conductivité thermique d'une couche mince de SiO_2 suspendue dans l'air en fonction de son épaisseur et pour trois températures $T = 300$ K, 500 K et 700 K.	87
3.18	Tracé de la conductivité thermique d'une couche mince de SiO_2 déposée sur du KBr et entourée d'air en fonction de son épaisseur et pour trois températures $T = 300$ K, 500 K et 700 K.	88

3.19	Contribution des cinq premiers modes azimutaux à la conductivité thermique due aux PPS en fonction du rapport rayon intérieur sur rayon extérieur d'un tube de SiO ₂ entouré d'air.	89
3.20	Conductivité thermique totale due aux PPS en fonction du rapport rayon intérieur sur rayon extérieur d'un tube de SiO ₂ entouré d'air pour trois températures différentes.	90
3.21	Schéma du nanofil en contact thermique avec les deux bains thermostatés.	92
3.22	Section circulaire du nanofil étudié.	92
3.23	Tracé de la conductance thermique d'un nanofil en fonction de la température pour un unique mode transmis ($N = N_0 = 1$).	94
3.24	Relation de dispersion du PPS pour des nanofils de SiC et de SiO ₂ dans l'air ($\epsilon_2 = 1$).	97
3.25	Longueur de propagation de PPS en fonction de la fréquence pour des nanofils de SiC et de SiO ₂ dans l'air ($\epsilon_2 = 1$).	97
3.26	Tracé de la partie réelle du vecteur d'onde transverse p' en fonction de la fréquence pour des nanofils de SiC et de SiO ₂ dans l'air.	98
3.27	Tracé du vecteur de Poynting pour un nanofil de SiC de rayon $a = 50$ nm selon l'axe radial.	99
3.28	Tracé des contributions des phonons et des PPS à la conductance thermique d'un nanofil de SiC, dont la géométrie est définie en figure 3.22, en fonction de la température.	100
4.1	Schéma expérimental de la détection de modes de surface par réflexion totale atténuée. Le milieu 3 est le prisme, le milieu 1, de l'air (ou du vide ou tout autre milieu non dispersif) et le milieu 2 est un milieu polaire dispersif supportant des PPS. En définitive le signal mesuré est la réflectivité en fonction de la fréquence $R(\omega) = \frac{I(\omega)}{I_0(\omega)}$ ou en fonction de l'angle d'incidence $R(\phi) = \frac{I(\phi)}{I_0(\phi)}$	107
4.2	Courbes de dispersion correspondant à une expérience simulée théoriquement de réflexion totale atténuée où le prisme est en KBr et le milieu dispersif est SiC. KBr et SiC sont séparés par de l'air. Ici la mesure est réalisée avec une source à fréquence réglable pour un angle d'incidence fixe. L'absorption de la lumière incidente apparaît à l'intersection des courbes de dispersion du PPS et de l'onde incidente dans KBr. La largeur de cette absorption fournit le temps de vie du PPS ($Im(\omega)$). L'allure de la courbe de réflectivité $R(\omega)$ est présentée à droite de la courbe de dispersion, le minimum de réflexion correspond au couplage radiatif du PPS.	108

4.3	Courbes de dispersion correspondant à une expérience simulée théoriquement de réflexion totale atténuée où le prisme est en KBr et le milieu dispersif est SiC. KBr et SiC sont séparés par de l'air. Ici la mesure est réalisée avec une source monochromatique dont on fait varier l'angle d'incidence. L'absorption de la lumière incidente apparaît aux intersections des courbes de dispersion du PPS et de l'onde incidente dans KBr. La largeur de cette absorption fournit la longueur de propagation du PPS ($Im(\beta)$). L'allure de la courbe de réflectivité $R(\phi)$ est présentée à droite de la courbe de dispersion où on observe une diminution de la réflexion pour deux angles d'incidence correspondant aux deux points de couplage radiatif du PPS.	109
4.4	Principe de la microscopie optique de champ proche : diffraction du rayonnement de champ proche en champ lointain par un dipôle.	110
4.5	Microscopie optique de champ proche par diffusion : la pointe diffracte le champ proche et réfléchit le champ incident qu'elle reçoit. L'interférence entre les deux ondes émises par la pointe permet de mesurer le PPS à température ambiante. Le champ proche est excité optiquement par la diffraction du rayonnement incident sur les bords d'une couche mince métallique déposée sur le substrat diélectrique.	112
4.6	Microscope à effet tunnel de rayonnement thermique : la pointe diffracte le champ proche stimulé thermiquement. Toutes les fréquences du PPS sont excitées, la mesure permet d'accéder à la densité locale d'états électromagnétiques.	113
4.7	Schéma d'un réseau illustrant l'absorption résonante d'une onde incidente par des modes de surface (a) et l'émission cohérente d'ondes de surface stimulées thermiquement (b).	114
4.8	Tracé de la relation de dispersion du PPS se propageant à la surface d'un réseau de SiC de période $6\ \mu\text{m}$. Le couplage radiatif a lieu pour tous les modes de PPS dont le vecteur d'onde est inférieur à $\frac{\omega}{c}$ représenté par le cône de lumière. Ici on voit que le PPS peut être diffracté pour des fréquences comprises entre $15,6 \cdot 10^{13}\ \text{rad.s}^{-1}$ et $17,8 \cdot 10^{13}\ \text{rad.s}^{-1}$ (entre $10,6$ et $12,1\ \mu\text{m}$). L'émission de chaque fréquence a lieu pour des angles d'observation θ donnés par leur vecteur d'onde $\beta = \frac{\omega}{c} \sin(\theta)$	115
4.9	Tracé de la relation de dispersion du PPS se propageant à la surface d'un réseau de SiC de période $3\ \mu\text{m}$. Dans ce cas le PPS ne peut être diffracté uniquement pour une fréquence de $17,8 \cdot 10^{13}\ \text{rad.s}^{-1}$ ($10,6\ \mu\text{m}$). L'émission à cette fréquence est isotrope, en effet le repliement de la courbe de dispersion a lieu dans la partie plate. Tous les vecteurs d'onde pour lesquels a lieu un couplage radiatif des modes de surface correspondent à la même fréquence.	116

4.10	Schéma de la diffraction du PPS à la pointe d'un microtube de verre. La base du tube de rayon millimétrique est chauffée, les PPS sont excités tout au long de la structure jusqu'à la pointe de rayon micrométrique.	117
4.11	Schéma d'une couche mince de verre d'1 μm d'épaisseur et de 120 μm de long.	118
4.12	Schéma de la section d'un microtube de verre de 100 μm de long, de 20 μm de diamètre extérieur et avec des parois d'un micromètre d'épaisseur. Le choix de la longueur plus faible que la couche mince est arbitraire et n'influence pas le résultat. . . .	119
4.13	Tracé des parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique du verre à partir des données expérimentales recueillies par Palik (traits pleins) et à partir de la modélisation utilisée dans le calcul Meep (points ronds). Le modèle surestime nettement l'absorption du verre à la fréquence considérée, mais cela n'a pas de conséquences critiques sur notre étude car cette absorption reste toujours très faible en absolu. Ceci n'empêche pas le PPS de se propager sur de larges distances.	121
4.14	Tracé de la densité d'énergie électromagnétique U en unités arbitraires (u. a.) pour une couche mince en verre de différentes épaisseurs. On observe la propagation puis la diffraction du PPS pour des épaisseurs de 0, 5 et de 1 μm , par contre pour la couche la plus épaisse, le PPS est absorbé par le verre et n'est pas diffracté. Ces résultats sont cohérents avec les résultats théoriques présentés dans la figure 3.4.	122
4.15	Tracé de la densité d'énergie électromagnétique U en unités arbitraires (u. a.) pour une section de microtube de verre de différents diamètres mais dont les parois ont une épaisseur constante égale à 1 μm . On observe un couplage des PPS de chaque paroi pour un diamètre allant jusqu'à 20 μm , au-delà la diffraction du PPS à chacune des parois est indépendante l'une de l'autre.	124
4.16	Tracé de la densité d'énergie électromagnétique U en unités arbitraires (u. a.) pour une section de microtube de verre de différentes épaisseurs, pour un même diamètre extérieur de 20 μm . La source excitatrice est, dans les trois cas, modulée par deux gaussiennes centrées sur les deux parois et de largeur à mi-hauteur 40 μm . On observe un couplage des PPS de chaque paroi pour une épaisseur allant jusqu'à 1 μm (limite de couplage), au-delà les PPS se déplacent indépendamment le long de chacune des parois s'ils ne sont pas complètement absorbés par le verre quand l'épaisseur est trop grande.	126

4.17	Tracé du rapport des énergies électromagnétiques du PPS diffracté sur celui en bout de tube avant diffraction en fonction de la position $z - z_0$, $z_0 = 80 \mu\text{m}$ étant le centre de la structure. Le calcul a été réalisé pour les simulations de la couche mince de verre d'un micromètre d'épaisseur et pour le tube d'épaisseur $1 \mu\text{m}$ et de diamètres extérieurs $10 \mu\text{m}$ et $60 \mu\text{m}$. Les points d'inflexion des courbes sont le résultat des interférences entre la diffraction des bords de source et celle du PPS.	128
4.18	Tracé du rapport des énergies électromagnétiques du PPS diffracté sur celui en bout de tube avant diffraction en fonction de la position $z - z_0$, $z_0 = 80 \mu\text{m}$ étant le centre de la structure. Le calcul a été réalisé pour les simulations de la couche mince de verre de $0,5 \mu\text{m}$ d'épaisseur et pour le tube de diamètre extérieur $20 \mu\text{m}$ d'épaisseurs $0,5 \mu\text{m}$ et $1 \mu\text{m}$	129
4.19	Micro-étireuse P-1000 de la marque Sutter Instrument.	130
4.20	Images d'un filament en platine entourant un tube d'un millimètre de diamètre avant étirement avec la micro-étireuse P-1000. Le filament peut avoir une forme en cuvette (photo en haut à gauche) ou en carré (photos en haut à droite et en bas). Le choix de la forme du filament aura un impact sur la forme finale de la pointe : la forme en cuvette permet un refroidissement plus rapide du filament compatible avec la fabrication d'électrodes pointues comportant un cône court par exemple [27]. Photos reprises de la référence [84].	130
4.21	Défectivité de différents détecteurs infrarouge à leur température de fonctionnement indiquée entre parenthèses. La fréquence de hachage utilisée est 1 kHz pour tous les détecteurs sauf pour la thermopile, le thermocouple, le bolomètre, la cellule Golay et le détecteur pyroélectrique où elle est à 10 Hz . Chaque détecteur est sensé mesurer le rayonnement hémisphérique d'un environnement à 300 K . Les courbes de détectivité théorique D^* limitées par le fond pour des détecteurs photoconducteurs, photovoltaïques ainsi que des détecteurs thermiques sont représentées en pointillés. PC : détecteur photoconducteur, PV : détecteur photovoltaïque, PE : détecteur photoémissif et PEM : détecteur photoélectromagnétique. On observe que le détecteur MCT est nettement l'appareil le plus sensible autour de $10 \mu\text{m}$. Figure reprise de la référence [102].	133
4.22	Défectivité du MCT-A utilisé pour l'expérience. La zone de longueur d'onde supérieure à $15,38 \mu\text{m}$ n'est pas utilisée à cause de la chute brutale de détectivité qui peut altérer les mesures (données fournies par Thermo Fisher Scientific).	134

4.23	Schéma optique du spectromètre à transformée de Fourier infrarouge. Tous les composants optiques sont des miroirs recouverts d'or pour assurer la réflectivité la plus forte possible en infrarouge et pour supprimer la dispersion chromatique inhérente à des lentilles (type Ge ou ZnSe en infrarouge). La séparatrice en KBr nécessite un environnement sec pour éviter sa dégradation.	136
4.24	Spectromètre à transformée de Fourier infrarouge Nicolet 6700 de Thermo Fisher Scientific. La photo correspond au schéma optique de la figure précédente. Le trajet du rayon lumineux est tracé en rouge.	136
4.25	Liaison périscope pour coupler le microscope et le spectromètre en mode émission. les deux miroirs plans permettent de conserver le faisceau collimaté sortant du microscope et arrivant à l'entrée de l'interféromètre.	137
4.26	Schéma de l'objectif Cassegrain.	138
4.27	Schéma optique du microscope infrarouge Continu μ m. Le miroir dichroïque permet de séparer les rayonnements visible et infrarouge, le rayonnement visible continue son chemin vers l'oculaire tandis que l'infrarouge se propage vers l'intérieur du microscope (données fournies par Thermo Fisher Scientific).	139
4.28	Intérieur du microscope Continu μ m, le trajet du faisceau IR est tracé en rouge. À part les deux miroirs paraboliques focalisant le faisceau sur un diaphragme, il n'y a que des miroirs plans conservant le faisceau collimaté tout au long de son trajet. Le dernier miroir à 45° renvoie le faisceau vers le périscope reliant le microscope au spectromètre en mode émission.	140
5.1	Tracé des signaux détectés lorsque l'interféromètre, puis le microscope puis l'objectif sont bloqués par des miroirs d'or. Le dernier signal (en gris) représente le signal du rayonnement ambiant, provenant de l'intérieur du spectromètre et du microscope, ainsi que le rayonnement ambiant mesuré à travers l'objectif du microscope. On observe entre 5 et 8 μ m l'absorption de l'eau dans l'air qui altère légèrement les mesures.	144
5.2	Différences de phase des signaux d'émission provenant de la séparatrice en comparaison avec ceux d'une source externe (soit le microscope dans notre cas). R : réflectivité de la séparatrice, t : transmittivité de la séparatrice, I_0 , I'_0 et I''_0 (E , E' et E'') représentent les intensités des rayons lumineux de la source externe (de la séparatrice) qui ont subi zéro, une ou deux réflexions sur la séparatrice ou les miroirs avec les changements de phase associés. Les miroirs sont supposés être des réflecteurs parfaits (figure reprise de la référence [62]).	146

5.3	Spectres bruts de mesure d'un échantillon de SiC chauffé à 300°C et du rayonnement ambiant.	147
5.4	Interférogrammes du rayonnement ambiant (courbe bleue), du rayonnement émis par un échantillon de SiC chauffé à 300°C non ré-aligné (courbe verte) et ré-aligné (courbe rouge). Le zoom dans l'insert permet de mieux visualiser l'alignement des interférogrammes autour de la position du miroir de différence de marche nulle (les croix montrent la méthode d'alignement des interférogrammes).	148
5.5	Signaux mesurés d'un échantillon de SiC chauffé à 300°C après soustraction de rayonnement ambiant, par soustraction de spectres (courbe verte) ou par soustraction d'interférogrammes (courbe bleue).	149
5.6	Rapport des signaux détectés du rayonnement pour différents instants. Le détecteur est refroidi au temps $t = 0$, le microscope est mis sous tension à $t = 200$ minutes et les lampes d'éclairage sont allumées à $t = 380$ minutes.	150
5.7	Spectres des signaux détectés d'une plaque de verre chauffée à 500°C avec une surface de détection de $1550 \mu\text{m}^2$, pour deux objectifs de grandissement et d'angle solide de détection différents. Ceux-ci sont quasiment identiques, signe que l'angle solide de l'objectif n'a pas d'influence sur la puissance du signal détecté.	152
5.8	Rapports des spectres obtenus avec les objectifs 15x et 32x. Chaque courbe correspond à une surface de détection.	153
5.9	Moyenne des rapports présentés dans la figure 5.8 (courbe pleine) avec l'écart-type correspondant (courbes en pointillés).	154
5.10	Tracé de l'intégration du signal détecté entre 2,5 et 15 microns en fonction de l'étendue du faisceau $\Omega_{\text{imag}} S_{\text{imag}}$ délimitée par le diaphragme pour les objectifs 32x et 15x. Les incertitudes présentées prennent en compte l'erreur de mesure de la surface d'observation via le réticule du microscope.	155
5.11	Montage expérimental de mesure du rayonnement de corps noir par le microscope IR. L'objectif est remplacé par un miroir parabolique qui permet de collimater le faisceau envoyé par le corps noir.	156
5.12	Tracé des signaux expérimentaux d'un corps noir chauffé à 700°C et à 1100°C comparé au signal théorique d'un corps noir à 1100°C calculé à partir du signal expérimental du corps noir à 700°C.	157
5.13	Mesure de la fonction de transfert du dispositif microscope et spectromètre IR à partir de l'émission d'un corps noir chauffé pour des températures comprises entre 600°C et 1100°C.	160
5.14	Émissivité d'un échantillon de verre sodocalcique pour un angle d'émission de 40° en fonction de la température.	162

5.15	Émissivité d'un échantillon de verre de quartz pour un angle d'émission de 40° en fonction de la température.	163
5.16	Rapport des intégrales I_1 , I_2 et I_3 en fonction de la température.	164
5.17	Mesure de la température de surface d'un échantillon de verre sodocalcique par thermocouple. L'échantillon est placé sur une platine chauffante HCP622V de la marque Instec.	165
5.18	Tracé des fonctions de transfert H obtenues à partir des signaux d'émission d'échantillons de verre sodocalcique et de verre de quartz.	167
5.19	Émissivités utilisées pour le calcul des fonctions de transfert de la figure 5.18. Les courbes représentées sont identiques à celles représentées dans les figures 5.14 et 5.15.	168
6.1	Transmittance d'une plaque de verre sodocalcique d'un millimètre d'épaisseur.	173
6.2	Schéma optique du microscope infrarouge Continuum en mode réflexion. L'ajout du miroir séparateur par rapport au mode émission permet de renvoyer le faisceau réfléchi vers le détecteur MCT interne au microscope (données fournies par Thermo Fisher Scientific).	174
6.3	Schéma des réflexions d'onde polarisée transverse électrique ou transverse magnétique pour un angle d'incidence quelconque.	176
6.4	Tracés de l'amplitude et de la phase de la réflectance du verre de quartz obtenues expérimentalement (courbes bleue et rouge) comparés aux courbes calculées à partir des constantes optiques répertoriées par Palik [91] (courbes verte et rose).	177
6.5	Tracés des parties réelle (ϵ') et imaginaire (ϵ'') de la permittivité du verre de quartz obtenues expérimentalement (courbes bleue et rouge) comparés aux courbes calculées à partir des constantes optiques répertoriées par Palik [91] (courbes verte et rose).	178
6.6	Tracés de l'amplitude et de la phase de la réflectance du verre sodocalcique obtenues expérimentalement.	179
6.7	Tracés des parties réelle (ϵ') et imaginaire (ϵ'') de la permittivité du verre sodocalcique obtenues expérimentalement.	180
6.8	Tracés de l'amplitude et de la phase de la réflectance du tube en verre borosilicate obtenues expérimentalement.	181
6.9	Tracés des parties réelle (ϵ') et imaginaire (ϵ'') de la permittivité du tube en verre borosilicate obtenues expérimentalement.	182
6.10	Comparaison des parties réelle (ϵ') et imaginaire (ϵ'') de la permittivité diélectrique entre le verre borosilicate et les valeurs référencées par Palik. La résonance de ϵ diminue très nettement pour le verre borosilicate par rapport à un verre de SiO_2 pur sans décalage important de la fréquence de résonance.	183

6.11	Photos d'une pointe de microtube de diamètre $0,8 - 0,9 \mu\text{m}$ au microscope optique. La même pointe a été observée avec un objectif de grossissement 5 (photo du bas) et avec un objectif de grossissement 50 (photo du haut).	184
6.12	Photo de microtubes dont le diamètre de la pointe est compris entre $0,5$ et $0,9 \mu\text{m}$. La partie conique mesure entre 5 et 7 millimètres. Le dépôt de cuivre absorbe le rayonnement du laser visible, chauffant ainsi le reste du tube. L'extrémité de la pointe a été cachée lors de la thermoévaporation pour y empêcher le dépôt permettant ensuite de n'observer au microscope que l'émission du verre et non, en plus, celle du cuivre.	185
6.13	Montage expérimental de chauffage par laser d'un tube en verre partiellement recouvert d'une couche de cuivre. L'objectif du microscope est focalisé sur la pointe du tube vierge de dépôt où se produit la diffraction du PPS.	186
6.14	Photo du support-échantillon permettant d'incliner la pointe du tube avec un angle de 35° par rapport à la normale. La partie noircie du tube étiré correspond à la zone de la couche de cuivre chauffée par le laser. Les points de focalisation du rayon sont visibles dans cette partie à cause des trous qu'ils forment à travers le tube.	186
6.15	Schéma de l'expérience de chauffage et de mesure de l'émission du tube en verre. Les plans successifs de focalisation de l'objectif sont présentés en bleu.	187
6.16	Signaux d'émission d'un même tube en verre borosilicate (après soustraction du rayonnement ambiant pour plusieurs diamètres jusqu'à la pointe. Dans la figure (a) les signaux sont bruts, l'amplitude diminue avec le diamètre du verre, mais en plus, sa forme spectrale est modifiée pour un diamètre inférieur à $100 \mu\text{m}$, ce qui est plus visible après normalisation des courbes. Figure (b) : les mêmes signaux d'émission sont normalisés à $7,8 \mu\text{m}$. La modification du spectre d'émission pour des diamètres inférieurs à $100 \mu\text{m}$ est visible surtout entre 4 et $7 \mu\text{m}$, ce qui s'explique par les modifications des propriétés radiatives du verre devenant semi-transparent pour des épaisseurs inférieures à $10 \mu\text{m}$. Figure (c) : zoom entre 7 et 11 de la figure (b). A partir d'un diamètre de $25 \mu\text{m}$, un pic élargi apparaît entre $8,2$ et $9,7 \mu\text{m}$, signe probable de diffraction du PPS en champ lointain.	188

6.17	Effet parasite du chauffage du tube sur le signal collecté à la pointe. La partie large du tube, bien qu'elle ne soit pas dans le plan focal de l'objectif, émet un rayonnement qui sera partiellement collecté par le microscope. En effet la profondeur de champ étant de l'ordre de λ/NA^2 (c'est-à-dire sensiblement égale à la longueur d'onde d'observation dans notre cas), la région où le rayonnement infrarouge est collecté dans la direction $\mathbf{z}$, dépasse très largement la zone observée dans le visible à travers l'oculaire.	189
6.18	Schéma de l'excitation du tube par une onde incidente lors de l'étude de son absorption par DDSCAT.	191
6.19	Section efficace d'absorption rapportée au volume du tube considéré. Cette section efficace volumétrique indique que la section efficace d'absorption est beaucoup plus faible pour le tube de 10 nm de longueur que pour celui de 3 millimètres de long.	192

Introduction générale

La gestion de l'efficacité des systèmes industriels ou d'usage courant comme les systèmes électroniques repose en partie sur les transferts thermiques. La maîtrise du conditionnement thermique de ces systèmes est effectivement cruciale pour leur bon fonctionnement. Le développement des nanotechnologies a complexifié cette maîtrise car la description de la propagation de la chaleur n'est pas la même à l'échelle microscopique qu'à l'échelle macroscopique. Rien que pour le transfert thermique par rayonnement, un des trois principaux modes de transfert, Planck avait déjà pris la précaution d'éliminer de sa théorie du rayonnement thermique les systèmes plus petits que la longueur d'onde. En effet à température ambiante la longueur d'onde du rayonnement maximal vaut $10\text{ }\mu\text{m}$. La théorie de Planck seule ne permet pas de prédire les comportements radiatifs de nanostructures. Ceci a entraîné le développement de l'étude du rayonnement de champ proche par opposition au rayonnement de champ lointain correspondant au transfert radiatif macroscopique.

Aux nano-échelles les rayonnements de champ proche et de champ lointain coexistent, mais le premier possède une densité d'énergie supérieure de plusieurs ordres de grandeur au deuxième. En revanche, dès que l'on considère des échelles de longueur dépassant la dizaine de microns, le rayonnement de champ proche s'effondre, laissant la place uniquement au rayonnement de champ lointain. La théorie de Planck appliquée aux transferts radiatifs aux nano-échelles n'est donc pas fausse, mais elle est incomplète. Elle ne prend pas en compte les ondes évanescentes, restant confinées en surface, alors que celles-ci jouent un rôle primordial dans le transfert radiatif à l'échelle nanométrique. Ces ondes de surface sont d'autant plus intéressantes que pour des objets nanométriques, le rapport surface sur volume augmente, exaltant les phénomènes de surface par rapport à ceux volumiques. Les transferts radiatifs ne font pas exception à cette règle.

Dans cette thèse nous nous sommes intéressés à un type de résonance de surface particulier : le phonon-polariton de surface (PPS). Il est le résultat d'un couplage entre un photon et un phonon transverse optique, et ne se produit qu'à l'interface entre un matériau polaire diélectrique et un autre diélectrique. Ce phénomène a été longuement étudié dans le cas de deux surfaces supportant ces ondes mises en interaction, c'est-à-dire lorsque leur distance de séparation est inférieure au micromètre. Le flux thermique augmente alors de plusieurs

ordres de grandeur par rapport à celui en champ lointain et il est monochromatique du fait de la résonance de surface. Cependant la manipulation de ce flux est difficile à cause de l'étroitesse de la séparation entre les deux plans (de quelques nanomètres à quelques dizaines de nanomètres) et parce que la distance de propagation des modes de phonon-polariton de surface n'excède pas quelques microns dans les directions du plan de la surface.

L'objectif général de ce travail de thèse est de démontrer théoriquement et expérimentalement la possibilité de guider la chaleur dans des nanostructures sur des longueurs largement supérieures à celles connues jusqu'alors. La structure du guide doit impliquer une propagation monochromatique et monodimensionnelle sur des distances de propagation pouvant atteindre le centimètre le long de la surface. Ce nouveau comportement physique du rayonnement de champ proche n'a encore jamais été rencontré à température ambiante.

Le premier chapitre de ce manuscrit précise le contexte de notre travail. Il mentionne les autres domaines d'études des transferts thermiques aux nano-échelles avant de préciser en détail la démarche scientifique adoptée pour concevoir un guide d'ondes de chaleur à partir d'un nanotube de verre. Le chapitre 2 fournit les origines physiques et les conditions d'existence du phonon-polariton de surface pour des matériaux diélectriques avec et sans pertes. La démonstration théorique du guidage du rayonnement de champ proche est exposée dans le chapitre 3.

La démonstration expérimentale du transfert radiatif de champ proche guidé est présentée dans les trois derniers chapitres. Avant d'être en mesure de pouvoir prouver par l'expérience nos résultats théoriques, il nous a paru opportun de mettre en évidence la propagation du rayonnement de champ proche dans une structure cylindrique, ce qui s'est avéré délicat. En effet le chapitre 4 mentionne divers procédés expérimentaux d'observation du phonon-polariton de surface avant d'introduire notre méthode originale qui s'appuie sur la diffraction de cette onde à la pointe du nanotube. Ce raisonnement a été étayé par des simulations numériques préparant le terrain de l'expérience. Puis les détails du montage expérimental de micro-spectroscopie infrarouge mettent en évidence son originalité dans la mesure d'émission thermique d'objets microscopiques.

Le chapitre 5 regroupe les techniques nécessaires à maîtriser pour réussir des mesures pertinentes d'émission thermique par micro-spectroscopie infrarouge. En effet, à notre connaissance, cette technique est inédite et pose des problèmes spécifiques de calibrage que nous aborderons. Enfin les résultats expérimentaux d'émission mais aussi de réflexion infrarouge sont analysés au chapitre 6, la réflexion permettant d'apporter des informations complémentaires pour notre étude (détermination des constantes optiques de l'échantillon). Nous concluons alors sur la détection expérimentale du phonon-polariton de surface guidé par un nanotube de verre.

Partie I

Étude théorique du rayonnement de champ proche

Chapitre 1

Introduction au rayonnement de champ proche

L'objectif de cette première partie introductive est de situer le contexte de l'intérêt porté par les chercheurs et l'industrie aux transferts thermiques aux nanoéchelles. Il répond à des exigences industrielles car le développement des nanosciences avec la miniaturisation des systèmes a montré que les comportements thermiques observés étaient de plus en plus différents de ce qui était connu. Ceci a eu des conséquences considérables sur le développement des applications présentées au début de ce chapitre. Cela a amené les thermiciens à s'intéresser en détail aux origines physiques des changements de lois de comportement thermique des objets de taille inférieure à ou de l'ordre du micron. Plus précisément ce sont plutôt des hypothèses largement vérifiées à l'échelle macroscopique qui deviennent fausses quand on atteint les nanoéchelles. Ce changement de description est présenté en seconde partie avec une attention particulière au rayonnement de champ proche qui est le sujet principal de ce travail de thèse. Les caractéristiques très intéressantes du rayonnement de champ proche ont donné naissance à diverses applications résumées par la suite qui auront très probablement un fort impact industriel dans un futur proche. Enfin nous montrons le lien et l'originalité de ce travail de thèse dans ce cadre global de l'étude du rayonnement de champ proche.

Les concepts présentés dans cette partie introductive sont en partie très généraux et ne sont pas tous indispensables pour la compréhension des chapitres suivants. L'idée est de montrer la place du rayonnement de champ proche dans l'examen global des transferts thermiques, ce qui oblige à mentionner brièvement les autres points d'études du transfert de chaleur aux échelles macroscopique et microscopique.

1.1 Les principaux défis industriels impliquant le transfert thermique à l'échelle micro/nanométrique

1.1.1 Le refroidissement des composants électroniques

En 1965 l'ingénieur Gordon Moore a prédit l'évolution de la complexité des semi-conducteurs produits pour l'électronique [78]. Il a conjecturé que la densité de transistors sur puce devrait doubler tous les deux ans pendant 10 à 15 ans or cette conjecture fut en fait valable pendant plus de 50 ans et elle fut appelée loi de Moore. Elle illustre bien l'incroyable croissance des performances des microprocesseurs qui a abouti au développement fulgurant de la microélectronique et des nanotechnologies. Pour preuve aujourd'hui la taille des transistors atteint quelques nanomètres. Cependant cette loi semble arriver au terme de sa validité, entre autres à cause du problème du contrôle thermique des microprocesseurs qui a entraîné le développement de l'étude des transferts thermiques aux courtes échelles.

En effet l'augmentation des performances s'est accompagnée d'une augmentation de la puissance de fonctionnement ainsi que de la densité de puissance des puces électroniques. Le refroidissement thermique de ces systèmes est alors devenu un véritable défi. Cela peut se comprendre aisément en considérant le Thermal Design Power (TDP) qui représente la puissance maximale que le microprocesseur doit dissiper pour fonctionner convenablement. Elle correspond au transfert thermique minimal que doit dissiper le composant sans être détérioré. Plus les performances des microprocesseurs augmentent, plus le TDP augmente, passant de 10 à 100W au cours des différentes générations (1.1). La densité de transistors sur puce ainsi que la fréquence d'utilisation augmentant tous les deux le TDP, la technologie multicœurs a permis de diminuer cette augmentation mais pas de la supprimer. En plus de l'augmentation du TDP un autre problème intervient : la non uniformité thermique des circuits provenant de la non uniformité de la distribution de puissance. Cela se traduit par l'apparition de points chauds qui doivent être maintenus en dessous d'une certaine température (liée au TDP). Le contrôle thermique du fonctionnement des composants électroniques correspond à la gestion de ces deux problèmes techniques pour leur assurer une bonne fiabilité et une bonne performance à long terme.

La stratégie pour le contrôle thermique des microprocesseurs s'articule globalement autour de 5 points [71] :

- minimiser l'impact des points chauds en améliorant la diffusion de chaleur
- trouver des solutions thermiques pour augmenter la capacité des circuits à dissiper la puissance thermique
- développer l'enveloppe thermique des systèmes
- respecter les contraintes économiques
- respecter les contraintes d'espace imposées par le package des produits.

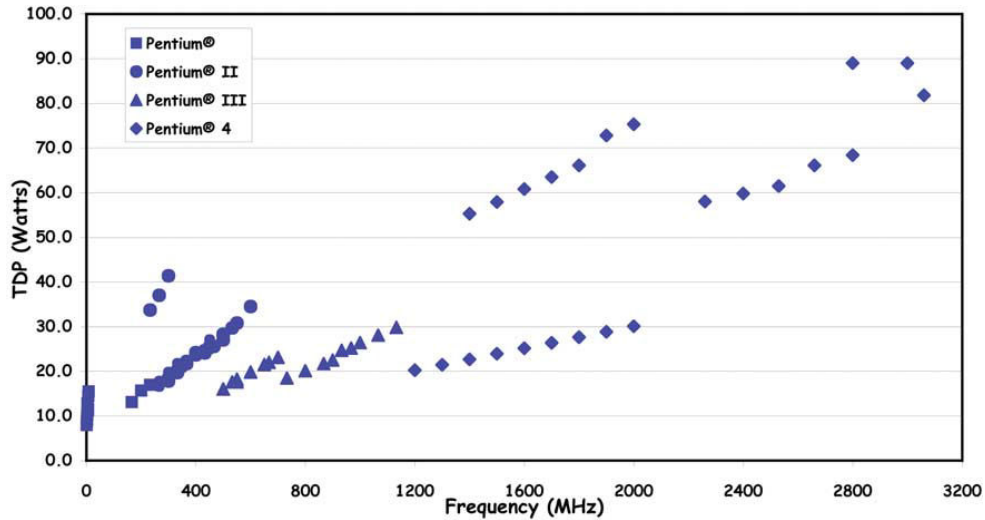


Figure 1.1 – Évolution de la TDP en fonction de la fréquence de fonctionnement. La tendance de plusieurs classes de microprocesseurs Intel est représentée. L'augmentation du TDP diminue grâce à la technologie de processeurs à multicœurs (figure reprise de la référence [71]).

Proposer des solutions thermiques au refroidissement des transistors sur puces représente une des principales motivations de la communauté de recherche des transferts thermiques aux nanoéchelles, ce qui est précisément l'objet de ce travail de thèse.

1.1.2 Les matériaux thermoélectriques

Les matériaux thermoélectriques possèdent la capacité de convertir de l'énergie électrique en énergie thermique et vice-versa. Selon l'effet Seebeck, un tel matériau soumis à une différence de température produira en réponse une tension suivant l'équation $V = \alpha \Delta T$ où V est la différence de potentiel apparaissant aux bornes du matériau, ΔT la différence de température imposée et α le coefficient Seebeck. De manière conjuguée, l'effet Peltier correspond à la production d'un gradient thermique au sein de matériaux thermoélectriques parcourus d'un courant électrique [77]. De tels matériaux ont l'avantage de proposer une solution simple de refroidissement ou de génération de chaleur et d'y assurer un contrôle par des voies électriques (voir la figure 1.2).

Pour savoir si un matériau est un bon thermoélectrique, il ne suffit pas de regarder uniquement son coefficient Seebeck. La thermoélectricité s'appuyant sur la diffusion rapide des porteurs de chaleur mobiles (électrons, trous), la

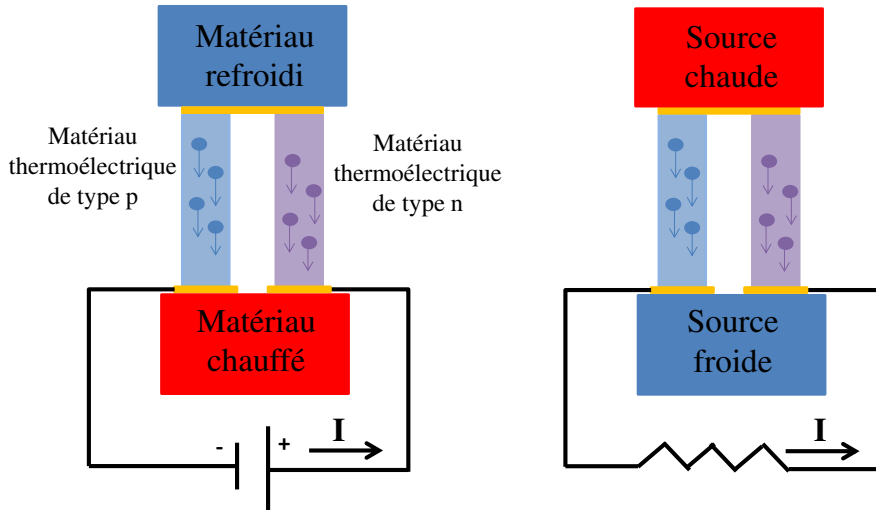


Figure 1.2 – Exemples de systèmes thermoélectriques : à gauche pour le refroidissement d'un matériau et à droite pour la génération de puissance électrique à partir de deux sources froide et chaude. Les matériaux thermoélectriques de type p possèdent des porteurs de chaleur majoritairement sous forme de trous alors que pour ceux de type n ce sont des électrons.

conductivité électrique σ doit aussi être élevée. Par contre pour maintenir des différences de températures à l'intérieur du matériau dans le cas de refroidissement ou de pompage de chaleur, la conductivité thermique k doit être faible. Ceci amène à définir un paramètre adimensionné pour classer les matériaux thermoélectriques, soit le facteur de mérite ZT défini tel que :

$$ZT = \frac{\alpha^2 \sigma T}{k} \quad (1.1)$$

Plus le facteur de mérite est grand, meilleures sont les performances du matériau. Cependant les matériaux existant à l'état naturel possèdent de piètres qualités thermoélectriques avec un facteur de mérite inférieur à 1 (voir la figure 1.3) tandis que des applications industrielles seraient envisageables pour un facteur de mérite de l'ordre de 3. En effet il faudrait un matériau qui soit à la fois bon conducteur électrique (comme un métal) mais aussi isolant thermique (comme un verre), sauf que ces deux propriétés sont opposées à l'état naturel!

En outre ces propriétés sont liées les unes aux autres si bien qu'une augmentation de la conductivité électrique s'accompagne souvent d'une diminution du coefficient Seebeck ainsi que d'une augmentation de la conductivité thermique. Pour remédier à ce problème, les chercheurs ont proposé deux solutions : soit de concevoir de nouveaux alliages assez complexes soit de créer des matériaux nanostructurés. Ces matériaux tels que les superréseaux, les nanofils ou les puits quantiques permettent de diminuer la conductivité thermique due aux phonons sans pour autant diminuer la conductivité électrique ni le coefficient Seebeck.

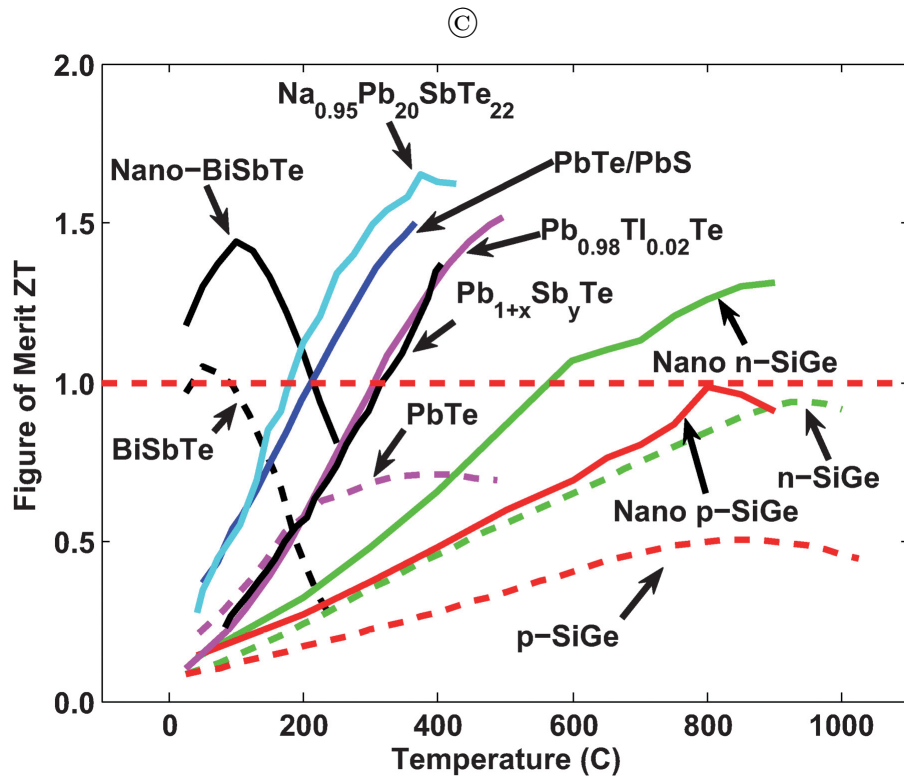


Figure 1.3 – État de l'art des facteurs de mérite de différents matériaux nanostructurés ou non en fonction de la température. La limite de facteur de mérite égal à 1 pour les matériaux à l'état naturel est illustrée par la ligne en pointillés horizontale (figure reprise de la référence [77]).

L'étude de la thermoélectricité a fourni un nouveau moteur au développement du transfert thermique aux courtes échelles d'autant plus que les matériaux thermoélectriques sont aussi une piste de solutions thermiques au refroidissement des microprocesseurs.

1.1.3 Les cellules thermophotovoltaïques

Une cellule thermophotovoltaïque (TPV) vise à convertir l'énergie thermique rayonnée par un corps chaud en énergie électrique, elle diffère d'une cellule

photovoltaïque par la température de la source émettrice. Une cellule photovoltaïque convertit le rayonnement solaire en électricité, la température du soleil est d'environ 6000 K (en surface) alors que celle d'une source de cellule TPV est de l'ordre de 1000–2000 K. Le rayonnement émis est beaucoup plus décalé dans l'infrarouge dans ce dernier cas, ce qui modifie les récepteurs nécessaires qui seront des semi-conducteurs à faible bande interdite (AsIn, GaSb par exemple) pour des cellules TPV au lieu de silicium pour les cellules photovoltaïques (PV) (voir la figure 1.4).

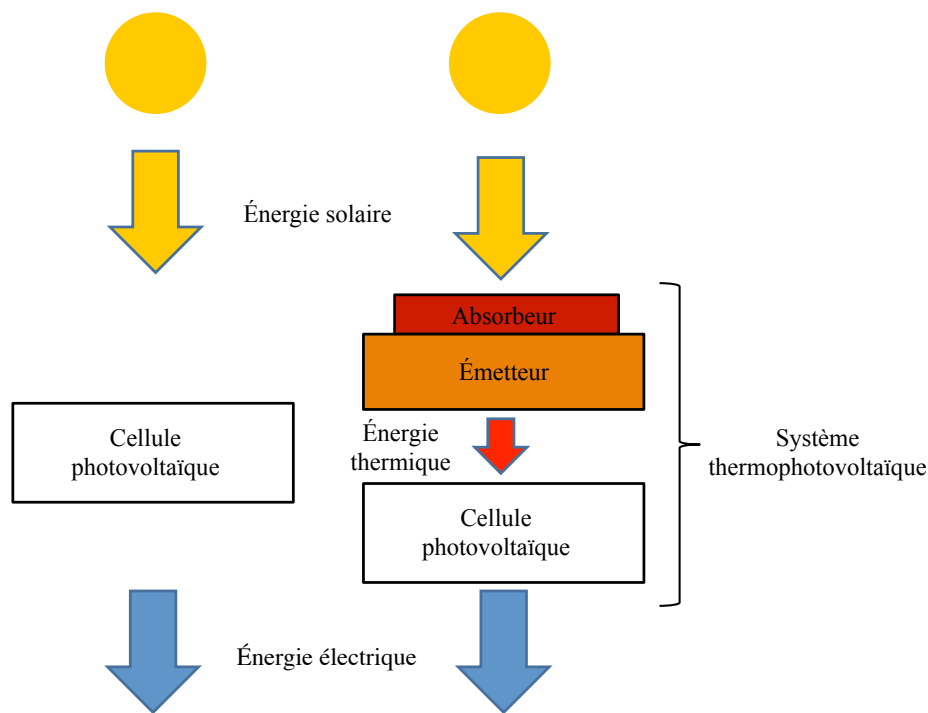


Figure 1.4 – Schéma de principe d'une cellule PV et d'une cellule TPV. La cellule PV convertit directement le rayonnement solaire en électricité tandis que la cellule TPV contient un système absorbeur-émetteur. Il permet d'absorber le rayonnement incident, ce qui va augmenter sa température, et ensuite de réémettre ce rayonnement vers le récepteur PV. Le soleil peut être remplacé par n'importe quelle source chaude pour une cellule TPV ([figure reprise de la référence [37]).

Le développement de ces cellules est limité à cause de leur faible puissance de sortie et de leur faible efficacité. En effet le rendement est limité d'une part par les photons émis avec une énergie inférieure à celle de la bande interdite du récepteur et ceux ayant une énergie supérieure. Les premiers ne sont pas absorbés par le récepteur, tandis que le surplus d'énergie des seconds n'est pas converti sous forme électrique. Toute cette énergie perdue est dissipée thermiquement dans le récepteur. Ceci a permis à Shockley *et al.* de proposer dès 1960 un rendement limite de 30 % pour de tels systèmes [107].

Une manière de contourner cette limite est d'augmenter le flux de photons incidents. Or cela n'est pas possible en champ lointain car le rayonnement thermique est limité par le rayonnement du corps noir. Cependant lorsque la source émettrice se rapproche du récepteur à des distances inférieures à la longueur d'onde de rayonnement (typiquement inférieures au micron), le comportement du rayonnement thermique s'éloigne de celui d'un corps noir. En effet les ondes évanescentes de surface se couplent et celles-ci contribuent au rayonnement thermique. Ce rayonnement s'ajoute aux ondes propagatives constituant le rayonnement de champ lointain. L'accumulation des deux contributions (ondes évanescentes plus ondes radiatives) augmente le transfert radiatif et ainsi la génération de photocourant. Plus la distance de séparation entre l'émetteur et le récepteur diminue plus cet effet s'accroît. De plus si ces ondes de surface sont monochromatiques à une longueur d'onde légèrement inférieure à celle de la bande interdite du semiconducteur-récepteur, l'amplification de la puissance de sortie et du rendement sera encore meilleure. Pour cela des systèmes avec des réseaux de surface ou des cristaux photoniques ont été proposés pour les sources thermiques afin d'améliorer leurs sélectivités spectrales. Laroche *et al.* ont montré que la puissance de sortie pouvait être augmentée d'un facteur 20 pour une lampe de tungstène approchée à une distance de 5 nm du récepteur par rapport au cas d'un corps noir en champ lointain à la même température et d'un facteur 35 pour une source monochromatique. De même le rendement pouvait atteindre 27 % pour une lampe de tungstène en champ proche et 35 % pour une source monochromatique à une distance de 5 nm ce qui est supérieur au rendement théorique de 30 % proposé par Shockley [69]. Néanmoins ces effets spectaculaires dépendent beaucoup des propriétés optiques de la cellule TPV pour assurer un bon accord entre les longueurs d'onde des ondes émises avec le gap.

Les cellules TPV sont une des applications possibles au rayonnement de champ proche, des précisions sur la conception de systèmes adéquats seront données dans la partie 1.3.4.

1.1.4 La diffusion thermique de nanoparticules à des fins thérapeutiques

Le traitement de maladies par hyperthermie (élévation locale de la température) est très ancien. Par exemple cette approche était utilisée pour traiter le cancer du sein il y a plus de 5000 ans [79]. Depuis, diverses méthodes ont été utilisées pour soigner cette maladie, comme l'application d'un fer chaud sur les cellules de la tumeur ou l'immersion de tout le corps dans un bain d'eau chaude. Aujourd'hui l'hyperthermie, grâce aux nanoparticules, est une des voies très prometteuses parmi les modes curatifs des cancers avec la radiothérapie, la chimiothérapie ou la chirurgie. En effet cette méthode permet d'être très sélective et de détruire surtout les cellules malignes sans affecter les cellules saines, ce qui n'est pas le cas de la chimiothérapie ni de la radiothérapie. Deux stra-

tégies sont possibles : un chauffage entre 42 et 45°C pendant quelques heures peut induire une apoptose (suicide cellulaire) des cellules cancéreuses ou du moins une stimulation de la réponse immunitaire, ou un chauffage à plus de 50°C (thermoablation) pendant quelques minutes détruit directement les cellules concernées. Les cellules cancéreuses sont en effet plus sensibles à la chaleur que les cellules saines. Cependant la thermoablation pose plusieurs problèmes : la température atteinte est très proche de la température de thermoablation des cellules saines, de plus l'accumulation soudaine de très nombreuses cellules tuées peut provoquer des chocs biologiques dangereux [47].

L'hyperthermie modérée est privilégiée même si elle nécessite d'être couplée à de l'irradiation et à de la chimiothérapie pour tuer efficacement les cellules malignes [47 et 79]. L'utilisation des nanoparticules pour l'hyperthermie en médecine est sujette au contrôle précis de la température induite par le chauffage de celles-ci mais aussi au ciblage des cellules malignes. Ce ciblage est possible en attachant des anticorps ou d'autres molécules biologiques à leurs surfaces [94] (voir la figure 1.5). En outre les nanoparticules doivent avoir une absorption maximale pour limiter la puissance du rayonnement incident. L'étude du transfert thermique aux nano-échelles permet de faire le lien entre l'excitation électrique ou magnétique et la chaleur dissipée par la particule. L'objectif des nano-thermiciens est de contrôler la température atteinte par les tissus malades environnants qui ne doit être restreinte qu'à un intervalle de quelques degrés.

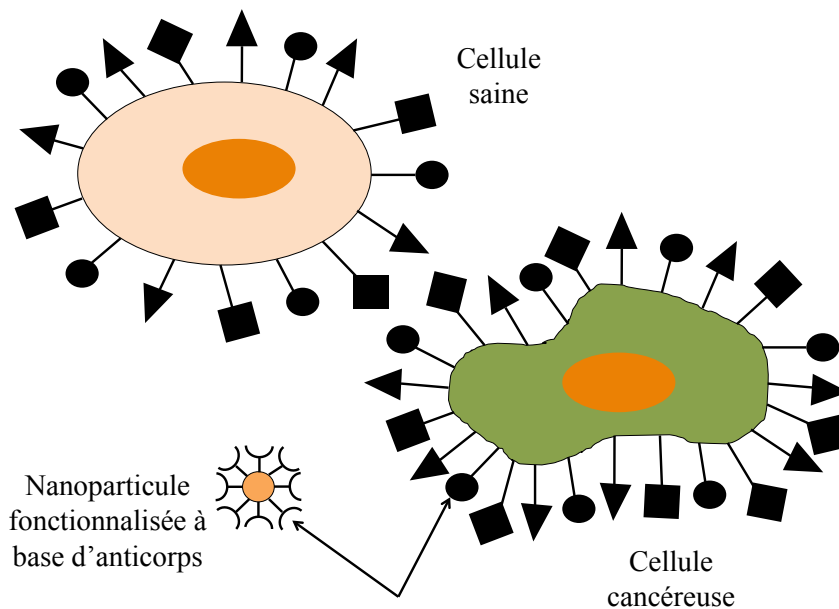


Figure 1.5 – Ciblage actif de cellules cancéreuses par une nanoparticule d'or fonctionnalisée grâce à des anticorps adaptés à sa surface.

Une première option réside dans l'utilisation de nanoparticules d'or d'une taille d'une dizaine à une centaine de nanomètres. Ce type de nanoparticules, sous réserve d'avoir une forme adaptée, possède une absorption de photons de 4 à 5 ordres de grandeur plus grande que celle de traceurs photothermiques classiques. Cette absorption permet de piloter le chauffage très localisé des tissus ou de délivrer des traitements en des endroits très ciblés. Cette absorption est due à la résonance de plasmon polariton de surface c'est-à-dire une résonance d'ondes électroniques à la surface de la nanoparticule qui lui permet de diffuser et d'absorber des rayonnements de longueur d'onde beaucoup plus grande que sa taille. Le rayonnement absorbé va se dissiper sous forme de chaleur provoquant une hausse très localisée de la température [94]. La résonance plasmon de nanoparticules d'or a lieu à environ 520 nm, mais celle-ci peut être décalée dans le proche infrarouge (800 – 1200 nm) en utilisant de nouvelles géométries de type nanotiges ou en utilisant des capsules de silice avec une fine couche d'or [94 et 48]. Le rayonnement incident peut être continu ou pulsé avec un laser femtoseconde : l'intérêt du laser pulsé réside dans l'augmentation du confinement du chauffage dû à la nanoparticule sans pour autant induire une plus forte augmentation de la température [5].

Lors de l'absorption du pulse de laser, le gaz électronique de la nanoparticule se thermalise très rapidement en environ une centaine de femtosecondes alors que les phonons (vibrations du réseau cristallin) ne sont pas encore excités. Les échanges entre les électrons et les ions du réseau ont lieu ensuite pendant environ une picoseconde, temps indépendant de la taille de la particule sauf si elle est inférieure à 5 nm. Ceci correspond à l'équilibre thermique interne à la particule indépendant de l'environnement. Cet échange avec l'environnement se produit ensuite pour des temps de l'ordre d'une centaine de picosecondes à quelques nanosecondes [5]. L'étude de la dissipation de chaleur par de telles particules est difficile car elle repose sur des approximations qui ne sont pas toujours valides, comme l'augmentation instantanée et uniforme de la température au sein de la nanoparticule, puis son maintien constant durant le processus de chauffage de l'environnement. Ces deux hypothèses dépendent de la taille de la particule et de sa conductivité thermique à l'interface.

Les nanoparticules magnétiques représentent la deuxième option d'hyperthermie localisée possible. Celles-ci s'échauffent lorsqu'elles sont soumises à un champ électromagnétique alternatif qui fait varier leurs aimantations. Le chauffage dépend donc de la fréquence et de l'amplitude du champ magnétique appliqué. Ces pertes magnétiques provoquant le chauffage sont soit le résultat des processus d'inversion d'aimantation lors du parcours du cycle d'hysteresis soit causées par les relaxations de Néel ou celles de Brown (voir la figure 1.6). Par contre elles ne sont pas causées par la génération de courants de Foucault [47]. Plus la taille de la particule diminue, plus les effets d'hysteresis s'atténuent laissant place aux autres phénomènes.

La relaxation de Néel correspond aux fluctuations de la direction de l'aimantation. Son énergie doit dépasser la barrière énergétique d'anisotropie du domaine

magnétique pour s'inverser. La relaxation de Brown représente la dissipation visqueuse entre la particule magnétique qui se retourne pour réorienter son moment magnétique et le milieu environnant. L'étude thermique des particules magnétiques a pour but d'augmenter la puissance d'absorption et donc la puissance de chauffage de celles-ci tout en limitant leur concentration et en assurant leur biocompatibilité. Le paramètre d'étude le plus important est la taille moyenne des particules associée à une distribution étroite. La prédiction de l'élévation de température reste difficile notamment parce que la conduction thermique et l'absorption d'énergie *in vivo* restent mal connues, d'autant plus que la température doit être précisément contrôlée pour éviter des surchauffes locales trop importantes et des lésions des tissus sains [79]. Une solution possible est la mesure de l'échauffement via l'imagerie par résonance magnétique (IRM) car la transition des protons dépend de la température. Mais des détails restent à éclaircir comme l'effet de la structure des nanoparticules sur les résonances magnétiques remettant en cause la pertinence de telles mesures.

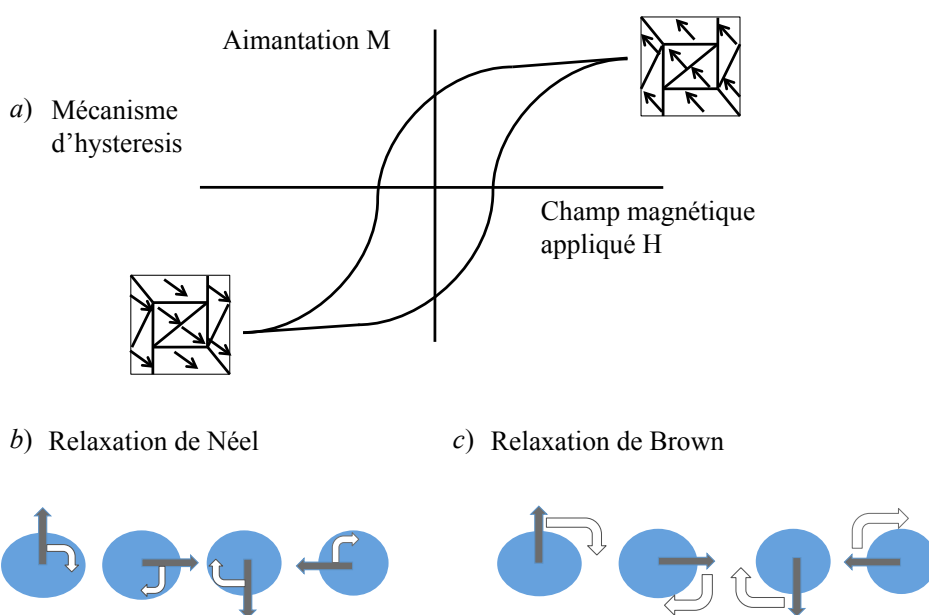


Figure 1.6 – Mécanismes de pertes magnétiques : a) le cycle d'hysteresis induisant l'inversion de l'aimantation des domaines magnétiques provoque une dissipation de chaleur, b) et c) relaxations de Néel et de Brown pour lesquelles l'inversion magnétique est freinée par l'anisotropie du milieu (Néel) ou par la viscosité du milieu environnant (Brown).

1.2 Les transferts thermiques de l'échelle macroscopique à l'échelle nanométrique

1.2.1 Interprétation physique des phénomènes mis en jeu

Les transferts thermiques sont connus et décrits par des lois énoncées au XIX^e siècle. Aujourd'hui on divise leur étude en trois sous-domaines : la conduction, la convection et le rayonnement.

La conduction fait référence au transport de chaleur par des porteurs au sein de la matière, ces porteurs peuvent être des molécules, des électrons, des phonons etc. suivant le milieu étudié. L'agitation de ces porteurs est proportionnelle à la température du milieu. Les chocs qu'ils vont subir avec d'autres porteurs vont transmettre l'énergie d'agitation. En fin de compte ces chocs permettent une homogénéisation de la température dans le milieu. La convection correspond aux transferts thermiques suivant un transport macroscopique de masse dans le système étudié. Elle peut être soit forcée, soit naturelle, soit mixte (à la fois forcée et naturelle). On l'observe dans les fluides pour lesquels le mouvement de masse peut être beaucoup plus efficace pour le transport de chaleur que la simple diffusion (conduction) au sein de celui-ci. Le flux de chaleur entre un fluide se déplaçant par rapport à une surface est d'autant plus efficace que sa vitesse est élevée, c'est le principe de la convection forcée utilisée pour les échangeurs thermiques ou les radiateurs de voiture par exemple [110]. Sans forçage le mouvement de fluide peut être juste amorcé à cause des variations de densité suivant la température car plus un fluide est chaud plus sa densité diminue. Il va alors s'élever à cause de la force de gravité plus faible agissant sur lui et au contraire les masses de fluides froides vont descendre. C'est ce qui explique le chauffage de l'eau dans une casserole posée sur le feu ou le fait que lors d'un incendie l'air frais se retrouve toujours proche du sol alors que l'air chaud monte. Ce phénomène correspond à la convection naturelle (voir la figure 1.7).

Enfin tout corps porté à une certaine température émet un rayonnement électromagnétique dont l'intensité spectrale dépend de sa température. Dans le cas idéal c'est le rayonnement de corps noir. Les échanges radiatifs entre matériaux *via* leurs émissions et absorptions participent aussi au transfert de chaleur tout comme la conduction et la convection.

Ces trois modes ainsi détaillés suffisent à pouvoir décrire de manière complète les transferts thermiques à notre échelle jusqu'à une échelle de longueur de l'ordre de quelques dizaines de micromètres. Cependant qu'en est-il lorsque l'on diminue la taille des systèmes en dessous du micromètre ? Le domaine du nanomètre marque souvent l'interface entre la physique classique et la physique quantique où les lois de comportement sont très différentes de celles de notre échelle. Ce changement de physique a un très fort impact sur la description des phénomènes à cette échelle : en effet la description des transferts thermiques doit s'appuyer sur les lois de l'optique, de l'électromagnétisme, de la physique

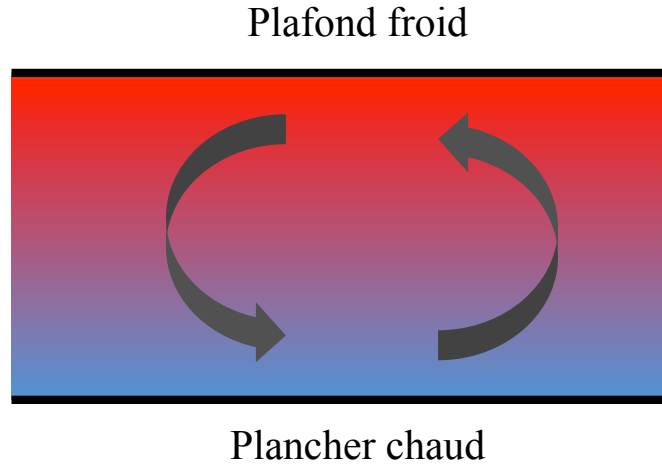


Figure 1.7 – *Mécanisme de convection naturelle de l'air dans une pièce.*

des matériaux etc. Il y a une convergence des sciences au nanomètre [116]. Repassons en revue l'évolution des trois modes de propagation de chaleur aux courtes échelles.

On ne considère plus la convection car celle-ci implique un transport de masse macroscopique qui n'a pas de sens aux nano-échelles. De plus à ces échelles les nombres adimensionnés type Grashof ou Reynolds sont faibles (inférieur à 10 pour le Grashof et à 100 pour le Reynolds) ce qui réduit les problèmes de convection à des problèmes de conduction dans les fluides. C'est ce qui est fait pour l'études des transferts thermiques en nanofluidique gazeuse [116].

À l'échelle macroscopique le parcours des porteurs de chaleur pour la conduction est limité par les chocs qu'ils subissent entre eux, la distance entre deux chocs est définie comme le libre parcours moyen. On parle dans ce cas de régime diffusif. Le libre parcours moyen est de l'ordre de 10 à 100 nm dans les cristaux, il peut descendre à quelques nanomètres dans les solides amorphes et il est de l'ordre de 50 nm dans l'air, dans les conditions normales de température et de pression. Lorsque les dimensions du système étudié diminuent jusqu'à atteindre la taille du libre parcours moyen, les porteurs de chaleur traversent le système sans subir de collisions : on passe du régime diffusif au régime ballistique. Dans ce régime les porteurs vont principalement subir des chocs dus aux parois du matériau (chocs déjà présents pour des systèmes macroscopiques mais négligeables devant le nombre de chocs entre porteurs). Ce changement de régime va profondément modifier les lois de comportement du transfert conductif.

Concernant le rayonnement, Planck avait déjà pris des précautions en ne proposant son modèle de rayonnement de corps noir que pour des échelles de longueur grandes devant la longueur d'onde d'émission thermique [95]. En champ lointain le rayonnement reçu provient des ondes propagatives émises par les charges oscillant dans le matériau. Cette émission à longue portée bien connue en $1/kr$

n'est pas la seule ni la plus intense lorsque l'on se rapproche de la surface (k étant le vecteur d'onde de l'onde émise et le point d'observation est à une distance r en coordonnées sphériques de la particule émettant). En rapprochant deux surfaces planes de deux corps semi-infinis à deux températures différentes, espacées d'une distance d (voir la figure 1.8), le transfert radiatif entre les deux matériaux est constant lorsque la distance de séparation est grande devant la longueur d'onde thermique, mais ce transfert augmente très nettement lorsque la distance de séparation atteint le micron voire moins. Cette augmentation provient des interactions dipôle-dipôle de courte portée (en $1/k^2 r^2$, $1/k^3 r^3 \dots$). Elles modifient sensiblement les transferts radiatifs jusqu'à devenir prépondérantes devant le rayonnement de Planck.

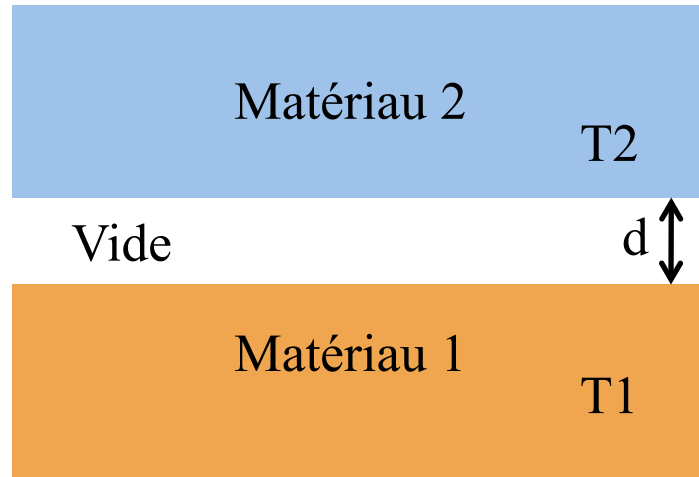


Figure 1.8 – Deux demi-plans infinis séparés à deux températures différentes $T1$ et $T2$ par du vide d'épaisseur d .

1.2.2 Modification des modèles utilisés

Cette partie est consacrée à la modification de la description de la conduction thermique aux courtes échelles, le rayonnement étant traité dans la partie suivante dédiée au rayonnement de champ proche.

Le transfert de chaleur conductif est décrit à l'échelle macroscopique par l'équation de Fourier :

$$\Phi = -\kappa \nabla T \quad (1.2)$$

avec Φ le flux de chaleur, κ la conductivité thermique et T la température. En

combinant cette équation avec celle de conservation de l'énergie :

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = -\nabla \Phi \quad (1.3)$$

avec ρ la masse volumique, c la capacité calorifique, on obtient l'équation de la chaleur :

$$\nabla^2 \Phi = \frac{1}{a} \frac{\partial T}{\partial t} \quad (1.4)$$

avec la diffusivité thermique $a = \kappa/\rho c$.

Pour un objet macroscopique le temps de propagation des transferts thermiques est de l'ordre de L^2/a où L est une longueur caractéristique du système. À cette échelle les transferts thermiques sont réputés lents. En effet si on considère le temps pour une sphère de 30 cm de diamètre d'atteindre l'équilibre thermique, on obtient 10^5 secondes soit une journée (en prenant une diffusivité de l'ordre de $10^{-6} \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ qui est une bonne approximation de celle de la plupart des matériaux connus). Si on diminue la taille de cette sphère à 1 nm on trouve un temps de 1 ps sauf qu'à cette échelle de longueur on atteint les limites du modèle car la propagation de la chaleur devient quasiment instantanée et dépasse la vitesse de la lumière. Il est donc nécessaire de modifier le modèle utilisé [115]. De manière générale l'équation de Fourier n'est plus valable lorsque les échelles de longueur considérées sont inférieures au libre parcours moyen des porteurs de chaleur et/ou que le temps considéré est inférieur au temps moyen entre deux collisions (nommé aussi temps de relaxation du matériau). Il faut alors s'intéresser à la propagation des porteurs de chaleur qui peuvent être décrits soit par une approche particulière soit par une approche ondulatoire suivant la dualité onde/corpuscule. La meilleure description est dictée par la valeur du paramètre L/λ où λ est la longueur d'onde des porteurs d'énergie. Dans le cas des solides ce sont les électrons et les phonons qui transportent la chaleur sous forme conductive, leur longueur d'onde est de l'ordre de quelques nanomètres à température ambiante, ce qui reste faible comparé aux tailles des solides considérés qui sont plutôt de l'ordre de la centaine de nanomètres. Les effets ondulatoires seront donc négligeables et la description particulière retenue comme pertinente. On peut donc utiliser l'équation de transport de Boltzmann pour décrire les transports de chaleur à ces échelles. Celle-ci fait intervenir la fonction de distribution des porteurs de chaleur. Sous l'approximation du temps de relaxation, l'équation de transport de Boltzmann s'écrit :

$$\frac{1}{v} \frac{\partial f}{\partial t} + \boldsymbol{\nu} \cdot \nabla f = \frac{f_0 - f}{\tau} \quad (1.5)$$

avec f_0 la fonction de distribution des porteurs à l'équilibre, v leur vitesse de groupe, τ leur libre parcours moyen et $\boldsymbol{\nu}$ un vecteur unitaire colinéaire au vecteur vitesse.

Il est possible de résoudre cette équation avec un traitement analytique complexe proposé par Ordóñez-Miranda *et al.* [86]. Néanmoins l'utilisation d'une

solution exacte ou approchée est indispensable pour pouvoir mener une étude rigoureuse du transfert de chaleur conductif à ces échelles, l'utilisation d'équations comme celles de Fourier ou de Cattaneo donnant des résultats sensiblement différents.

Il est aussi possible de résoudre le problème du calcul du transfert thermique par conduction en utilisant des voies purement numériques *via* la dynamique moléculaire. Cette approche considère les atomes d'un système reliés les uns aux autres par une force dérivant d'un potentiel propre au matériau modélisé. La masse et la position des atomes sont aussi définies par rapport au matériau étudié, mais leur vitesse initiale est laissée aléatoire tout en respectant des contraintes d'énergie totale du système. À chaque pas de temps le principe fondamental de la dynamique est résolu pour chaque atome. Cela permet d'obtenir leurs vitesses et leurs positions. La propagation des vibrations de la maille cristalline (phonons) est calculée au cours du temps et on en déduit la courbe de dispersion de ces ondes ainsi que le flux de chaleur conductif résultant. Cette méthode a l'avantage de pouvoir donner rapidement des résultats pour des petites structures avec des tailles ne dépassant pas la dizaine de nanomètres, mais elle est plus compliquée à mettre en oeuvre pour des structures plus grandes et surtout elle dépend énormément du type de potentiel utilisé entre les atomes qui peut donner dans certains cas des résultats limités [103 et 117].

1.2.3 Le rayonnement de champ proche

À l'échelle macroscopique le rayonnement est décrit par le produit d'un paramètre inférieur à 1 appelé émissivité et de l'intensité de rayonnement d'un corps noir donné par la loi de Planck. L'écart à l'idéalité du rayonnement de corps noir qu'est le rayonnement du corps réel considéré est contenu dans l'émissivité. Ce facteur est assez compliqué à déterminer en pratique car il dépend de la longueur d'onde, de l'angle d'émission, de la nature du matériau ainsi que de son état de surface. Néanmoins ce modèle permet d'estimer assez bien les transferts thermiques radiatifs à notre échelle ou du moins de pouvoir connaître le rayonnement maximal en jeu (en prenant une émissivité égale à 1). Cependant cette approche est limitée aux grandes distances c'est-à-dire supérieures à la longueur d'onde thermique car elle ne prend pas en compte les interactions de courte portée ainsi que les caractéristiques ondulatoires des ondes électromagnétiques.

Reprenons le cas de deux corps semi-infinis à deux températures différentes séparés d'une distance d par du vide (cf figure 1.8). Pour une distance supérieure à $10\ \mu\text{m}$ l'approche macroscopique décrite précédemment reste valable : on est dans le domaine du champ lointain. Pour une distance inférieure à $10\ \mu\text{m}$ le rayonnement échangé dépasse celui prédit par la loi de Planck. En effet des ondes évanescentes sont transmises par effet tunnel d'un matériau à l'autre. Ces ondes évanescentes sont regroupées en deux types : celles provenant de réflexions limites d'ondes propagatives qui ne peuvent pas se propager dans le

vide mais au contraire produisent une onde s'atténuant en surface, et celles confinées en surface qui s'atténuent au cours de leurs propagations aussi bien dans le matériau que dans le vide (voir la figure 1.9). Ce sont ces deux types d'ondes évanescentes qui participent à l'augmentation du transfert radiatif à l'échelle du nanomètre et que l'on appelle rayonnement de champ proche [17].

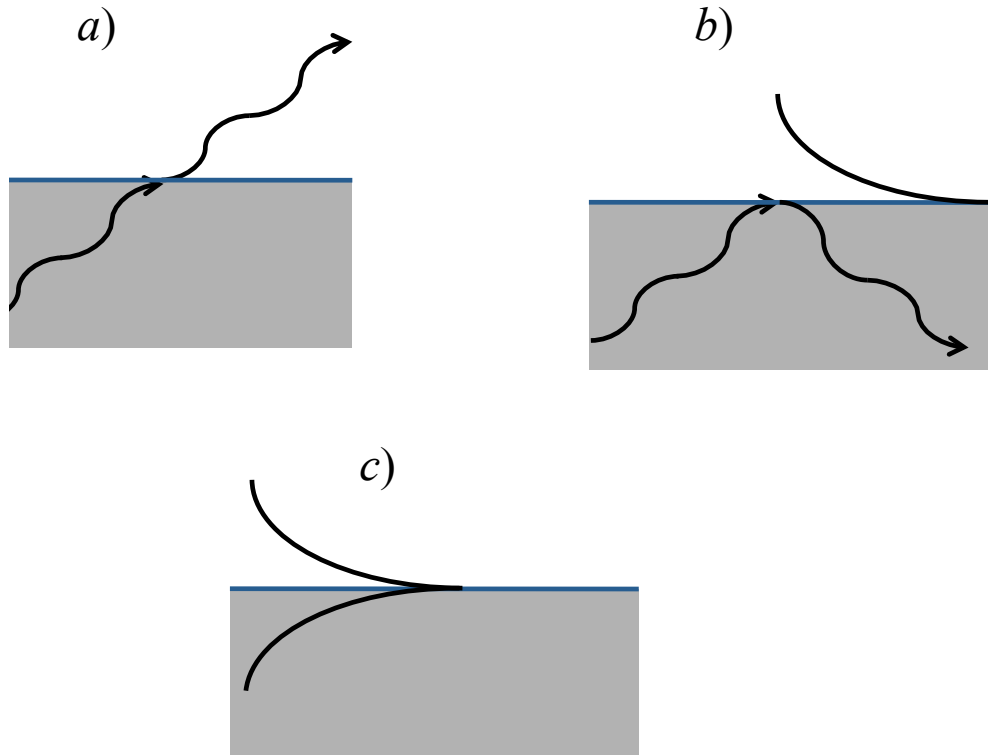


Figure 1.9 – Schéma des différents types d'ondes émanant d'un milieu : a) ondes propagatives transmises à l'interface alors que b) et c) correspondent au cas des ondes évanescentes non transmises. Le cas b représente les ondes évanescentes résultant de réflexions limites alors que le cas c illustre les ondes de surface.

Le calcul de l'intensité de ces ondes peut être fait *via* l'électromagnétisme classique. En effet ces champs sont créés par un ensemble de dipôles que l'on peut assimiler à de petites antennes dont on peut calculer le champ émis en tout point. Ces dipôles s'agitent de manière aléatoire et génèrent des courants dont la valeur moyenne est nulle tout comme celle du champ rayonné. Par contre le carré de ces grandeurs a une valeur moyenne non nulle, ce qui signifie que ce sont les fluctuations du champ émis qui sont responsables du rayonnement à courte portée ou rayonnement de champ proche. Ainsi le calcul se fait en introduisant des courants stochastiques modélisant l'agitation thermique aléatoire des dipôles. Le théorème de fluctuation-dissipation permet d'obtenir les fluctuations de ces courants à partir de l'absorption du milieu et de l'énergie d'un

oscillateur en équilibre à la température du milieu. L'équation utilisée est :

$$\langle j_m(r_1, \omega) j_l(r_2, \omega') \rangle = 4\pi\epsilon_0 \text{Im}(\epsilon) \omega \frac{\hbar\omega}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1} \delta_{ml} \delta(r_1 - r_2) \delta(\omega - \omega') \quad (1.6)$$

où le membre de gauche est la fonction de corrélation des courants à deux points r_1 et r_2 , m et l font chacun référence à l'une des coordonnées x , y ou z , ω est la fréquence, ϵ la constante diélectrique, et $\hbar$ et k_B les constantes de Planck et de Boltzmann [115].

Cette approche par l'électromagnétisme classique est valable jusqu'à une dizaine de nanomètres dans la matière ; en-deçà on doit prendre en compte les effets de non localité et donc la dépendance de la constante diélectrique en fonction de la position et non seulement de la fréquence. La prise en compte des ondes évanescentes montre que le transfert radiatif peut dépasser de plusieurs ordres de grandeur celui dû au rayonnement de Planck, notamment en considérant la densité énergétique de ces ondes par rapport à celles propagatives (voir la figure 1.10).

1.3 Applications du rayonnement de champ proche

Malgré les grandes difficultés techniques à observer le rayonnement de champ proche, de nombreuses applications ont déjà été proposées pour tirer profit de ses propriétés très intéressantes (caractère quasi-monochromatique et densité énergétique très grande). Dans cette partie une revue des principales utilisations pratiques du champ proche est présentée.

1.3.1 Modifications des propriétés d'émission-absorption de matériaux

Comme pour les matériaux thermoélectriques, les chercheurs se sont rendu compte que la nanostructuration de systèmes pouvait modifier profondément leurs propriétés radiatives et ont pu ainsi concevoir des absorbeurs-émetteurs nouveaux adaptés à des applications comme le refroidissement de jour ou la modulation d'émission thermique.

L'équipe de Shanhui Fan à Stanford a proposé un système de refroidissement radiatif à large bande qui fonctionnerait de jour comme de nuit [100]. Ce système a le grand avantage d'être passif donc de fonctionner sans apport d'énergie car il s'appuie sur la réflexion (sans absorption) du rayonnement solaire dans l'ultraviolet, le visible et le proche infrarouge où il est maximal. Par contre l'émission est maximale entre 8 et 13 μm dans la zone de transparence de l'atmosphère. Ceci permet en effet de pouvoir concentrer l'énergie émise dans la fenêtre spectrale où celle-ci pourra s'échapper dans l'espace. Les propriétés exceptionnelles de cette structure sont acquises en partie grâce aux propriétés du champ proche. Elle est composée de deux cristaux photoniques bidimensionnels, l'un en quartz et l'autre en carbure de silicium. Ces deux matériaux

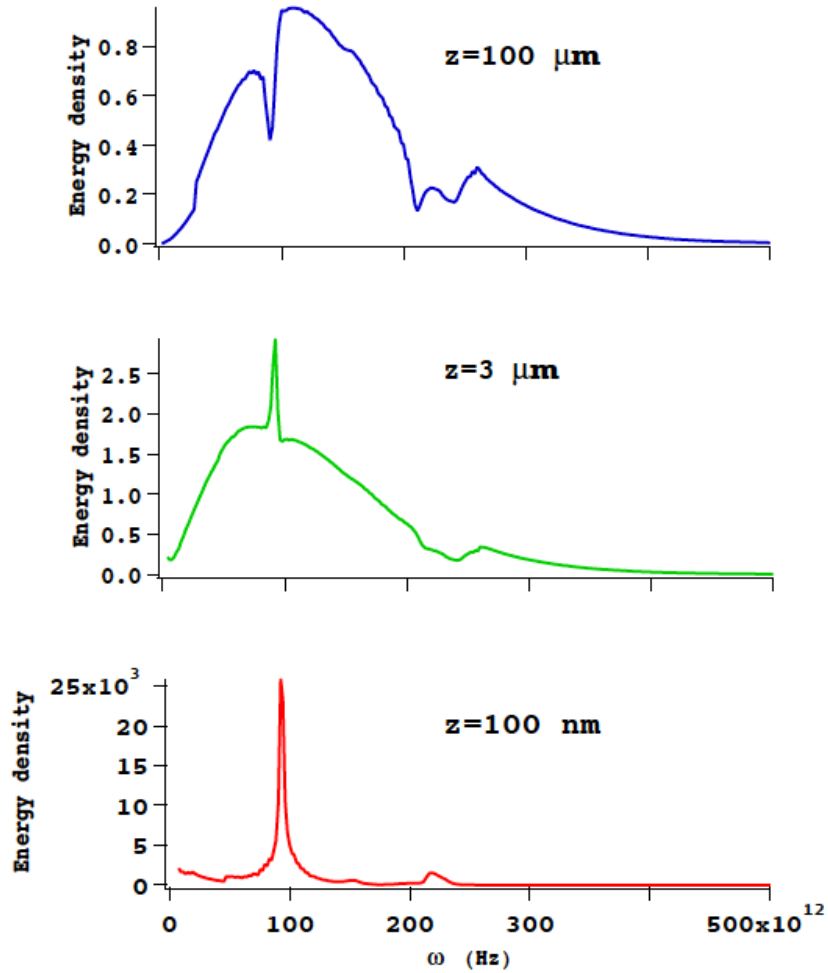


Figure 1.10 – Densité d'énergie calculée pour trois hauteurs différentes au-dessus d'une surface de silice amorphe à 300 K dans le vide. L'augmentation de la densité d'énergie est due à la contribution croissante du rayonnement de champ proche (figure reprise de la référence [115]).

sont polaires et peuvent supporter des résonances d'ondes de surface (appelées phonon-polaritons de surface qui seront présentées plus en détail dans le chapitre suivant) l'un à $9,3 \mu\text{m}$ (quartz) et l'autre à $12,5 \mu\text{m}$ (carbure de silicium). Ces ondes restent confinées en surface sauf si la surface est microstructurée facilitant leur diffraction en champ lointain. Les deux cristaux photoniques ont donc la mission de diffracter ces ondes de surface, d'où la forte émission de la structure dans la zone spectrale de transparence atmosphérique. De plus ces deux matériaux absorbent peu dans le visible et le proche infrarouge, ce qui est

compatible avec la fonction de miroir désiré. En effet le reste de la structure est composé d'un empilement de couches de TiO_2 à fort indice optique et de MgF_2 à faible indice optique déposé sur un substrat d'argent. Les couches n'ont pas la même épaisseur pour maximiser la réflexion large bande. Un schéma de principe du système est présenté en figure 1.11 accompagné du résultat du calcul de modélisation du spectre d'émission.

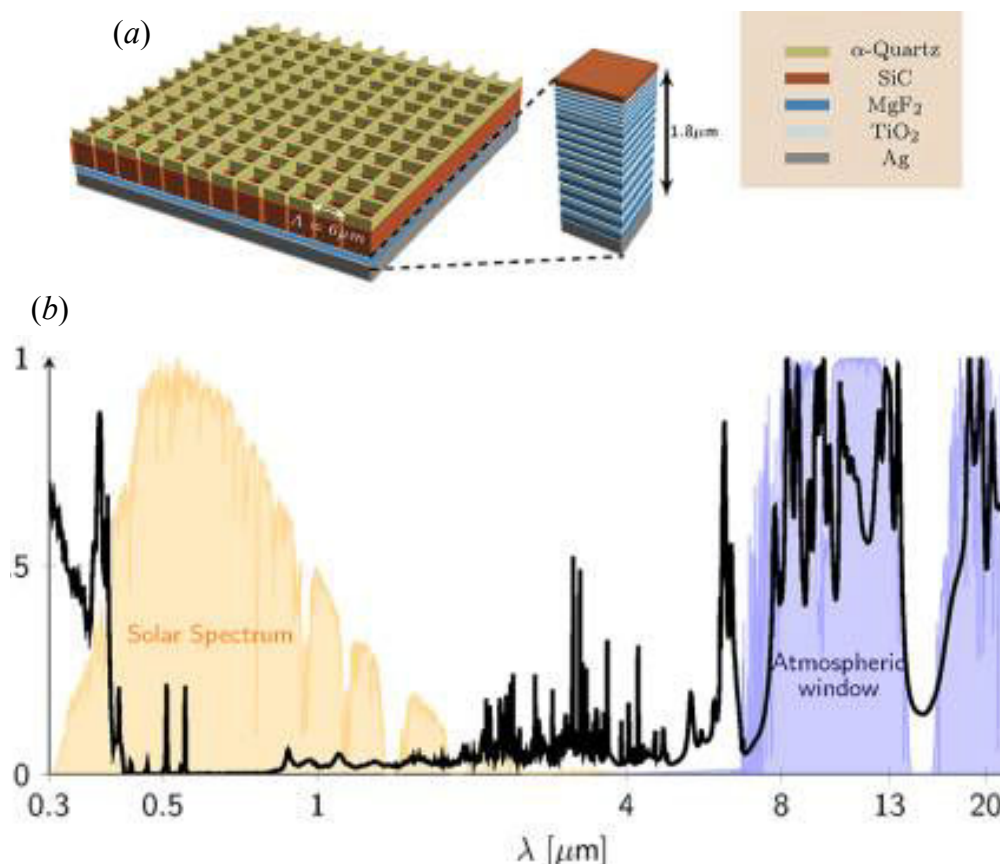


Figure 1.11 – (a) Refroidisseur radiatif composé de deux cristaux photoniques l'un en quartz et l'autre en SiC en dessous duquel est placé un réflecteur solaire large bande. Ce réflecteur est conçu avec cinq bicouches faites en MgF_2 et TiO_2 de périodes non constantes. Le tout repose sur un substrat d'argent. (b) Tracé de l'émissivité normale de la structure qui montre une faible absorption du rayonnement solaire représenté en orange pour une émission très forte dans la gamme de transparence atmosphérique représentée en indigo (figure reprise de la référence [100]).

Le contrôle des propriétés radiatives peut même être poussé plus loin grâce à la modulation d'émission thermique par impulsions électriques. Vassant *et al.* ont proposé un nouveau système de modulation optoélectronique qui tire

aussi son origine du rayonnement de champ proche (voir la figure 1.12). À la base il s'agit de proposer une solution pour contrôler électriquement l'absorption de rayonnement électromagnétique *via* l'interaction entre électrons et ondes de surface. Cependant cette interaction est difficile car l'extension spatiale des ondes est beaucoup plus grande que la taille des puits quantiques où sont confinés les électrons. Pour y remédier l'idée est d'utiliser des matériaux dont la fonction diélectrique est proche de zéro. Pour des fréquences où la fonction diélectrique est quasiment nulle, une résonance du champ électrique va se produire dans le matériau considéré. Cela provient de la conservation de la composante normale du vecteur déplacement à l'interface entre deux matériaux qui s'écrit $\epsilon_{1z}E_{1z} = \epsilon_{2z}E_{2z}$. Si ϵ_{2z} tend vers zéro, la valeur du champ E_{2z} va tendre vers l'infini afin d'assurer que leur produit reste fini et égal à la valeur du champ de déplacement dans le matériau 1. C'est ce qui se produit au niveau du puits quantique pour des fréquences égales à celles des ondes de surface dans la structure proposée par Vassant *et al.* . L'exaltation des ondes de surface grâce à la diminution de la constante diélectrique a lieu uniquement dans le puits quantique, ce qui favorise l'interaction avec les électrons qui y sont confinés. Cela a pour effet d'augmenter l'absorption à cette fréquence de résonance. Cependant lorsqu'une tension est appliquée à la structure, les électrons introduits produisent une autre résonance qui modifie la constante diélectrique du puits quantique et la dévie de zéro. L'absorption du champ incident chute. On voit alors qu'il est possible de moduler l'absorption et donc en retour l'émission thermique. Les fréquences de modulation possibles atteignent le gigahertz, loin des quelques dizaines de hertz difficilement accessibles en variant la température des sources thermiques [113].

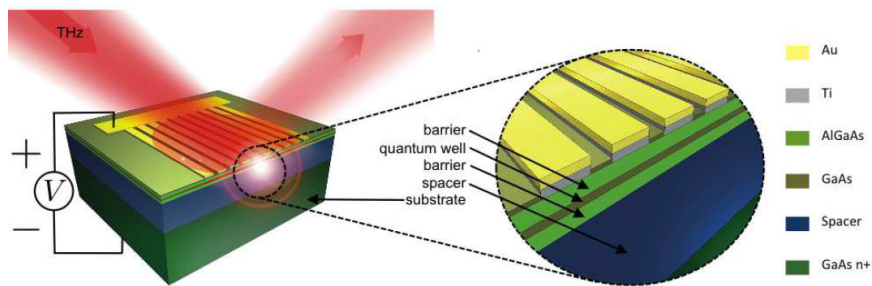


Figure 1.12 – Système d'absorbeur modulé fondé sur l'effet epsilon proche de zéro : le système est constitué d'un réseau d'or posé sur un puits quantique en GaAs séparé de deux barrières en AlGaAs. Le tout repose sur une couche d'AlGaAs (de composition différente de l'alliage utilisé pour le puits quantique) reposant elle aussi sur un substrat en GaAs dopé (figure reprise de la référence [113]).

1.3.2 Le refroidissement sans contact

Le transfert radiatif entre deux plans semi-infinis a été très largement étudié théoriquement, mais les résultats expérimentaux sont beaucoup moins nombreux. Il y a en effet de nombreux obstacles à cette mesure comme l'alignement des plans qui doivent être le plus parallèles possible et avec une surface très propre pour empêcher la présence de poussières. En effet celles-ci modifient le contact thermique voire le contact direct entre les deux surfaces. Comme la distance de séparation des plans est inférieure à $10\text{ }\mu\text{m}$, l'alignement de surfaces à quelques centaines de nanomètres de précision pour des surfaces millimétriques est très compliqué. De plus si on cherche à modifier la distance de séparation entre les parois, c'est encore plus difficile. Pourtant cette expérience peut ouvrir la voie à de nouvelles méthodes de refroidissement sans contact. L'interféromètre laser détectant les ondes gravitationnelles LIGO est un exemple d'application possible. Ce gigantesque interféromètre est basé sur le principe de l'interféromètre de Michelson avec des bras optiques de 4 km de longueur. Pour pouvoir mesurer les ondes gravitationnelles les chercheurs ont décidé de placer les bras de l'interféromètre sous vide et de les refroidir à des températures cryogéniques dans le but d'améliorer le rapport signal sur bruit. Ils veulent en plus augmenter la puissance du laser envoyé dans le système optique afin d'augmenter la sensibilité des mesures critiques pour détecter les ondes gravitationnelles. Cependant le laser à forte puissance chauffe les optiques, ce qui détériore les mesures. Il faut refroidir ces composants qui sont sous vide et isolés des séismes si bien que les chauffages classiques par conduction et convection sont proscrits. Il ne reste alors plus que le refroidissement par rayonnement, mais la contribution du champ lointain n'y est pas suffisamment efficace. Par contre l'utilisation du transfert radiatif de champ proche est une solution possible à ce problème technique, bien qu'elle nécessite l'utilisation de surfaces macroscopiques pour être intéressante [10].

L'équipe de Richard Ottens a réussi à monter une telle expérience en mesurant le coefficient de transfert radiatif entre deux plaques de saphir de dimensions $50 \times 50 \times 5\text{ mm}^3$. Le saphir a été choisi car il a une bonne conductivité thermique mais surtout c'est un bon candidat pour la fabrication des dispositifs de détection d'ondes gravitationnelles. Son dispositif expérimental est présenté en figure 1.13. Une des deux plaques de saphir est chauffée par un anneau de cuivre parcouru d'un courant alors que l'autre reste froide. Le courant est contrôlé pour maintenir une différence de température constante entre les deux plans. La température est mesurée des deux côtés par un thermomètre à diode de silicium et l'alignement des surfaces est possible grâce aux quatre coins de chacun des plans recouverts d'une fine couche de 200 nm de cuivre. Ces couches servent de petits condensateurs mesurant la séparation et l'alignement angulaire des surfaces. Le tout est mis sous vide pour supprimer la conduction de l'air. Les mesures ont été possibles jusqu'à des distances de $3\text{ }\mu\text{m}$ (voir la figure 1.13). Les résultats expérimentaux et théoriques sont en bon accord même si les

valeurs expérimentales sont un peu surévaluées, vraisemblablement à cause des mesures de distance entre les plans qui ne sont pas rigoureusement parallèles [89].

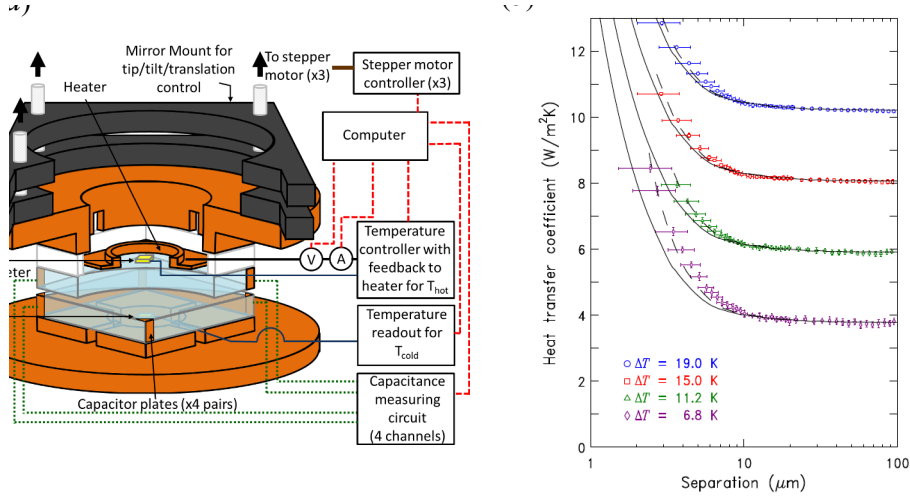


Figure 1.13 – (a) Montage expérimental de la mesure du transfert radiatif entre deux plans de saphir. L'échantillon chaud a sa température contrôlée par une boucle de rétroaction, la puissance nécessaire pour maintenir une différence de température constante entre les deux plans fournit la mesure du coefficient de transfert thermique. Des moteurs pas-à-pas sont utilisés pour ajuster l'alignement et l'écartement des saphirs. (b) Tracé du coefficient de transfert thermique en fonction de la distance. Les points expérimentaux sont donnés avec les barres d'erreur. Les lignes continues représentent les prédictions théoriques de l'expérience pour des surfaces parfaitement planes, tandis que les lignes en pointillés incluent des surfaces légèrement courbes afin de tenir compte des défauts expérimentaux (figures reprises de la référence [89]).

Néanmoins ces travaux sont, à notre connaissance, les premiers à mesurer le transfert radiatif de champ proche pour des systèmes aussi grands et prouvent la possibilité de développer des systèmes de refroidissement sans contact efficaces.

1.3.3 La conception de rectificateur thermique

La rectification thermique concerne les systèmes où le transfert de chaleur est privilégié dans une direction et atténué dans l'autre. Il est l'analogue en électricité des diodes, c'est pourquoi on parle aussi de diode thermique. Considérons deux matériaux 1 et 2 à deux températures T_c et T_f avec $T_c > T_f$. On a le principe suivant pour la diode thermique : si le matériau 1 est à T_c et le 2 à T_f , il y a transfert thermique de l'un à l'autre : la diode est passante, par contre si on échange les températures, le transfert thermique est bloqué ou au moins a nettement diminué : la diode est bloquante. Les premières solutions techniques proposées s'appuyaient sur le transfert de phonons et d'électrons qui permettaient d'obtenir de telles propriétés grâce à des effets non linéaires [88].

Cependant les performances obtenues étaient assez faibles notamment parce que la vitesse des phonons (acoustiques dans ce type d'application) avaient des vitesses quatre à cinq fois inférieures à celle de la lumière. Ce n'est pas le cas des photons dans le cadre du transfert thermique radiatif pour lequel les phénomènes non linéaires sont beaucoup plus faibles. Néanmoins un tel système n'est possible que si les deux matériaux considérés ont des propriétés optiques (la constante diélectrique) dépendantes de la température et que ces dépendances sont différentes entre les deux matériaux. Le rayonnement de champ proche est très vite devenu incontournable pour deux raisons : il a une intensité beaucoup plus importante que le rayonnement de champ lointain et permet donc d'avoir des commutations thermiques plus marquées, et les fréquences de résonance des ondes de surface le caractérisant sont très dépendantes des propriétés optiques des matériaux en jeu (voir schéma de principe en figure 1.14). Cependant cela implique une distance de séparation entre les deux matériaux inférieure au micromètre.

Plusieurs systèmes de rectificateurs thermiques ont été proposés dans la littérature scientifique comme l'assemblage de carbure de silicium 3C avec du carbure de silicium 6H [88], d'une couche mince en face d'un substrat faits tous les deux de silicium dopé avec deux dopages différents [6], de multicouches d'or et de silicium dopé et non dopé [83] ou entre un substrat de silicium et un de VO₂ [9]. On mesure les performances de ces systèmes *via* le coefficient de rectification R défini comme la différence nette de transfert de chaleur entre le cas où la diode est passante et celui où la diode est bloquante :

$$R = \frac{|q_P - q_B|}{\max(q_P, q_B)} \quad (1.7)$$

où q_P et q_B représentent les flux de chaleur respectivement quand la diode est passante et bloquante.

Les rectificateurs thermiques cités précédemment ont des coefficients de rectification maximaux de 44 % [88], 52 % [6], 70 % [83] et 92 % [9] pour des différences de température de quelques centaines de degrés entre la source chaude et froide. Le dernier cas proposé utilise un matériau à transition de phase métal/isolant : l'oxyde de vanadium. C'est un cas intéressant car l'oxyde de vanadium change de comportement émissif pour une température critique de 340 K. En-dessous il se comporte comme un émetteur métallique large bande et au-dessus il devient un isolant très fort réflecteur. Le coefficient de rectification peut atteindre des valeurs très élevées en augmentant la différence de température entre les deux matériaux mais aussi en augmentant l'écart entre la température de la source chaude et la température critique. La différence de comportement de VO₂ au flux thermique sera alors encore plus asymétrique, ce qui est le but recherché [9].

Cet effet a favorisé le développement du transistor thermique dont le principe s'appuie sur celui du transistor à effet de champ. Dans ce dernier cas la structure permet de contrôler le courant transitant entre la source et le drain *via* une porte

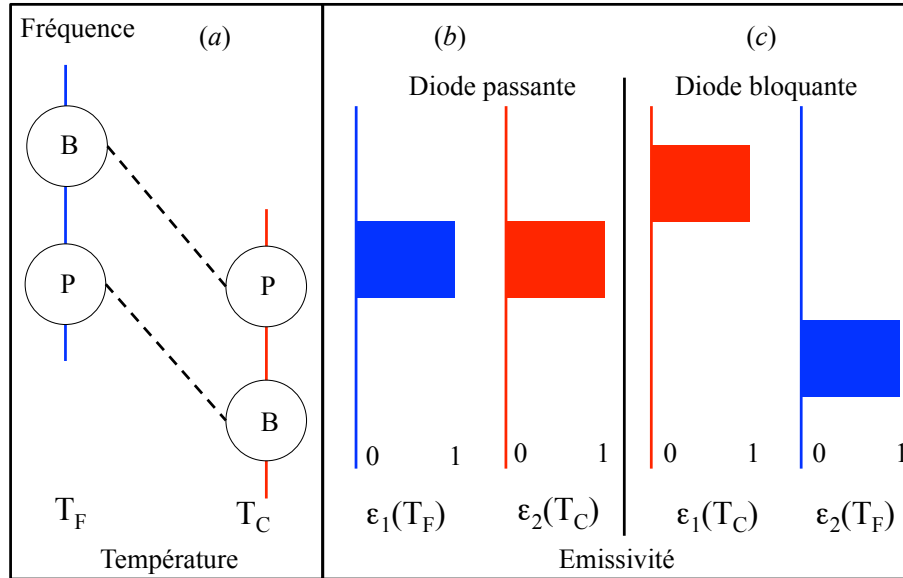


Figure 1.14 – (a) Schéma de principe des points de fonctionnement d'une diode thermique (P pour diode passante et B pour diode bloquante) : les traits en pointillés correspondent aux variations de la fréquence de résonance des ondes de surface pour un même matériau en fonction de la température. Les traits pleins correspondent aux températures de fonctionnement. La diode est passante lorsque les fréquences de résonance des ondes de surface des deux matériaux sont identiques ou très proches, elle est bloquante lorsque les fréquences diffèrent. (b) Recouvrement des émissivités des deux matériaux dans le cas idéal de diode passante (cas idéal : émissivité maximale aux fréquences de résonance et nulle ailleurs). (c) Non recouvrement des émissivités dans le cas idéal de diode bloquante.

qui peut bloquer ou non le courant. Pour ce faire celle-ci modifie la conductivité du canal entre la source et le drain lorsqu'elle subit une différence de potentiel à ses bornes (voir schéma de principe en figure 1.15). Le transistor thermique se base sur le même principe sauf que l'on remplace le courant électrique par un transfert de chaleur. Le système proposé par Ben-Abdallah et Biehs est composé de deux substrats de silice séparés par du vide dans lequel est intercalée une fine couche de VO_2 . Lorsqu'il n'y a pas de flux thermique imposé à la porte et que sa température est inférieure à celle de la température critique, elle transmet la chaleur entre la source et le drain. Par contre si un flux thermique est imposé de sorte que sa température dépasse la température critique, la porte jouera le rôle de barrière thermique si bien que le flux thermique perdu par la source et reçu par le drain diminuera drastiquement. Un tel système donne

la possibilité de développer des commutateurs thermiques, des modulateurs thermiques ainsi que des amplificateurs thermiques, propriétés sous-jacentes d'un transistor thermique [8].

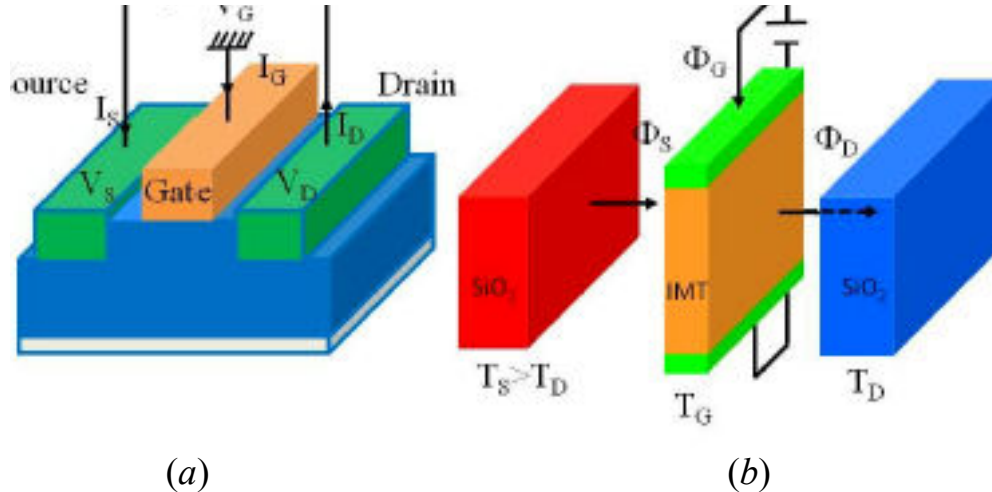


Figure 1.15 – (a) Schéma de principe d'un transistor électronique constitué d'une source, d'un drain et d'une porte. Le courant passe de la source vers le drain et il est bloqué lorsque l'on applique une tension aux bornes de la porte. (b) Transistor thermique composé d'une source et d'un drain en silice entre lesquels est placée à une distance submicrométrique une couche d'un matériau à changement de phase jouant le rôle de porte. Lorsqu'un flux de chaleur suffisant est imposé à la porte, celle-ci isole thermiquement la source et le drain (figures reprises de la référence [8]).

1.3.4 Les cellules thermophotovoltaïques de champ proche

Dans le cas d'un transfert thermique en champ lointain, les cellules TPV connaissent le même problème principal que les cellules PV à savoir un faible rendement. Grâce aux travaux sur le transfert thermique de champ proche, les chercheurs ont commencé à réfléchir à la conception de nano-cellules TPV pour augmenter le rendement. Ainsi Narayanaswamy *et al.* ont montré que les modes électromagnétiques de surface (phonon-polaritons de surface) pouvaient augmenter de manière significative le rendement de tels systèmes [81]. Néanmoins les premières tentatives expérimentales restent timides. En 2001 DiMatteo *et al.* ont conçu une cellule avec un émetteur à base de silicium avec pour récepteur une photodiode en InAs. Les deux matériaux étaient séparés par des plots de silice pour avoir un écart de l'ordre du micron. L'émetteur est chauffé à des températures de l'ordre de 350 à 400 K. Lors de la diminution de la distance de séparation, le courant en court-circuit augmente d'un facteur 5. Pour s'assurer que cette augmentation est bien la cause de l'exaltation des modes de surface entre les deux matériaux et non dû à un effet thermique parasite, un test

dynamique est réalisé. La membrane de silicium subit des oscillations en température pour des fréquences entre 200 et 1000 Hz, fréquences trop élevées pour qu'un équilibre thermique puisse s'établir autre que par rayonnement. Le courant mesuré oscille bien aux fréquences de la membrane confirmant l'influence des ondes de surface [32].

La dépendance des performances du système en fonction de la distance de séparation n'est pas plus clairement présentée. En 2007 Hanamura *et al.* ont mesuré la puissance de sortie d'une cellule constituée d'un émetteur en tungstène chauffé à 1000 K par un laser CO₂ et d'un récepteur en GaSb. La distance de séparation entre les deux matériaux peut être modifiée et mesurée précisément jusqu'à 10 μm grâce à un microscope. Malheureusement les résultats intéressants apparaissent pour des distances inférieures à 3 μm où ils observent d'abord une diminution de la puissance de sortie. En effet le rayonnement de champ proche augmente le transfert radiatif pour un même chauffage (l'intensité du laser restant constante pendant les mesures) ce qui provoque une diminution de la température de l'émetteur et donc une diminution de la puissance de sortie. Par contre pour une distance de l'ordre de 1 μm à 500 nm, le rayonnement de champ proche devient tellement fort qu'il finit par compenser la diminution de la température de l'émetteur et même la dépasser, ce qui se traduit par une brève augmentation de la puissance de sortie avant de diminuer brusquement lors du contact. Cependant les puissances sont très faibles, de l'ordre du milliWatt pour des surfaces d'émission de l'ordre de quelques millimètres carrés. Récemment Lennert *et al.* ont conçu un nouveau système de cellule TPV nanophotonique. Celui-ci absorbe le rayonnement solaire grâce à des nanotubes de carbone qui vont à leur tour chauffer un cristal photonique 1D de silicium et de silice. Ce cristal va émettre un rayonnement beaucoup plus monochromatique que le rayonnement solaire permettant d'augmenter le rendement de la cellule PV qui suit (voir la figure 1.16). La distance de séparation entre l'émetteur et la cellule PV est beaucoup plus grande que pour les applications précédentes (300 microns contre moins d'une dizaine), ce qui facilite grandement la mise en application. Le rendement obtenu est de 3,2 %, à comparer au 1 % atteint pour des systèmes similaires auparavant [70].

Même avec le rayonnement de champ proche les rendements restent faibles expérimentalement alors que théoriquement des résultats très intéressants sont possibles. Ceci a motivé les recherches numériques pour concevoir de nouvelles structures avant de pouvoir les tester en pratique. Plusieurs solutions techniques ont été proposées qui s'appuient soit sur une amélioration de l'émetteur soit sur une amélioration du récepteur. Parmi ces solutions on peut citer celles de Nefzaoui *et al.* qui ont proposé d'adapter l'émetteur au récepteur en contrôlant ses propriétés émissives [82]. Ils ont développé une méthode numérique pour concevoir des structures simples à base de deux ou quatre couches minces alternant une couche transparente en métal et une couche absorbante composée d'un semi-conducteur. La méthode utilise les constantes optiques des matériaux et l'épaisseur des couches pour définir une structure ayant une émissivité maxi-

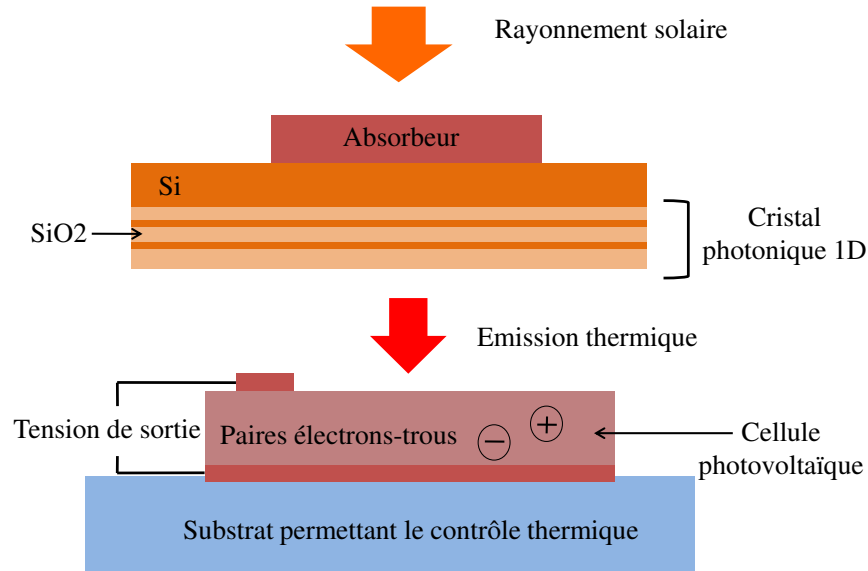


Figure 1.16 – Schéma de principe d'une cellule TPV nanophotonique. La lumière du soleil est convertie en rayonnement thermique avant d'être transformée en énergie électrique grâce au système émetteur-absorbeur.

male à une certaine longueur d'onde et faible ailleurs. Ceci est obtenu grâce à la couche transparente dont les caractéristiques (nature du matériau et épaisseur de la couche) sont calculées pour avoir une réflectance nulle à cette longueur d'onde et élevée sinon, et à la couche absorbante qui est aussi optimisée pour avoir une absorption maximale à cette longueur d'onde. Les systèmes proposés sont de type Ge associé au SiC, au BN ou au AlN pour une bicouche ou des couches d'Au ou d'Ag associées à du silicium très dopé pour une structure quatre couches. Dans ce dernier cas les résonances s'apparentent à celle d'une cavité Fabry-Pérot [82]. Cette idée de corriger le désaccord de fréquence entre celle des ondes surface et celle de la bande interdite du récepteur a aussi été reprise pour modifier les propriétés émissives de ce dernier. Messina *et al.* ont utilisé une feuille de graphène intercalée entre du nitrure de bore chauffé à 450 K et une cellule d'InSb à laquelle elle est rattachée. La modification du potentiel chimique du graphène (dépendant des liaisons chimiques avec l'InSb) permet le couplage entre les phonon-polaritons de surface du nitrure de bore et les modes de surface du système graphène-InSb. L'énergie électrique produite est accrue, le rendement augmente de 10 % à 20 % par rapport au cas sans graphène [76]. Récemment les travaux de Bright *et al.* ont étudié l'amélioration

de nano-cellules TPV d'un autre aspect : la gestion de l'énergie rayonnée non convertie (inférieure à l'énergie de la bande interdite) [14]. Cette énergie perdue par l'émetteur est absorbée par le récepteur sous forme de chaleur ou par son substrat si le récepteur est suffisamment fin, résultant en une diminution du rendement. L'ajout d'un miroir d'or à l'arrière du récepteur permet de réfléchir ces photons vers l'émetteur, ce qui a pour effet de diminuer le transfert radiatif au substrat mais surtout de baisser le flux de chaleur en surface du semi-conducteur. Une augmentation de 35 % du rendement par rapport au cas sans miroir est possible [14].

Cette dernière amélioration aborde un point discuté en détail par Francoeur *et al.* : la nécessité de refroidir le récepteur pour conserver les mêmes performances [40]. En effet la plupart des études considèrent que l'émetteur et le récepteur gardent la même température pour assurer de bonnes performances, sauf que les transferts thermiques impliquent un échauffement de la partie froide qui peut être désastreux en terme de rendement. Francoeur *et al.* ont montré que pour un émetteur de tungstène à 2000 K le rendement pouvait chuter de 24 % pour un récepteur en InGaSb à 300 K à 3,2 % lorsque sa température montait à 500 K avec une distance de séparation de 20 nm. Le coefficient de transfert thermique nécessaire pour faire refroidir efficacement le récepteur atteint $10^5 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ correspondant à une convection forcée avec de l'eau en régime turbulent. Le refroidissement des récepteurs ainsi que les effets de bord, l'épaisseur des matériaux utilisés, les inhomogénéités, la rugosité de surface, les difficultés de parallélisme des surfaces sont autant de facteurs qui ont besoin d'être étudiés numériquement car ils peuvent avoir de sérieux impacts sur les expériences développées par la suite [40]. Pour remédier à ce problème Francoeur, Vaillon et Mengüç ont déposé un brevet de cellules TPV disposées en cascade : chaque cellule est disposée l'une après l'autre avec des distances de séparation de 10 à 50 nm. Chacune d'entre elles permet de refroidir sa voisine par effet tunnel du champ proche tout en assurant une production d'électricité (pour plus de détails voir la référence [39]).

1.3.5 L'imagerie thermique de champ proche

L'imagerie classique optique en infrarouge a des performances limitées en résolution spatiale à $10 \mu\text{m}$ à cause de la limite de diffraction. Le développement de microscopies optiques de champ proche a permis de gagner un facteur 1000 sur les résolutions maximales. Il est alors possible de faire des images d'objet en moyen infrarouge avec une précision de 100 nm. De plus les densités d'états électromagnétiques locales sont mesurées comme un microscope à effet tunnel mesure les densités d'états électroniques locales. Or ce type de mesures donne accès à la nature même du matériau et même à certaines propriétés chimiques comme le dopage de semi-conducteur [51]. Cette nouvelle forme d'imagerie s'appuie sur des innovations de systèmes déjà existants que sont le microscope à force atomique et la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier.

En 2006 De Wilde *et al.* ont proposé une première technique d'imagerie thermique de champ proche couplant une pointe de microscope à force atomique avec un microscope infrarouge [31]. La pointe est utilisée en mode « tapping » c'est-à-dire que ses oscillations l'amènent à toucher la surface de l'échantillon. Les amplitudes d'oscillation sont contrôlées par une boucle de rétroaction en tension sur le matériau piézoélectrique qui fait osciller la pointe. Le signal en tension fournit la topographie de la surface comme un microscope à force atomique classique. Mais en plus la pointe diffracte les ondes de surface en champ lointain, celles-ci sont captées par l'objectif du microscope infrarouge qui focalise le signal sur un détecteur MCT (Mercure-Cadmium-Tellure). Le signal est alors démodulé aux fréquences Ω et 2Ω , avec Ω la fréquence d'oscillation de la pointe, par une détection synchrone. Un schéma de l'expérience est présenté en figure 1.17. Le choix de la fréquence de démodulation influe sur la hauteur au-dessus de l'échantillon où est mesuré le rayonnement de champ proche. Ceci permet de mesurer les résonances de surface et leurs atténuations perpendiculaires à la surface pour des matériaux différents [31]. Dans ce dernier cas l'échantillon peut être chauffé ou rester à la même température que la pointe mais avec une intensité du signal plus faible. Il est aussi possible de refroidir l'échantillon comme ce que propose Kittel *et al.* où la pointe du microscope à force atomique est améliorée en y intégrant un thermocouple permettant de mesurer directement le flux de chaleur (voir la figure 1.17) [63]. L'échantillon est refroidi à 110 K tandis que la pointe est à température ambiante. Les mesures se font à des distances très faibles de l'ordre de la dizaine de nanomètres, ce qui pose des problèmes théoriques concernant le calcul des densités d'états électromagnétiques. En effet il apparaît des effets de non localité de sorte que l'approximation dipolaire ainsi que l'approche perturbative ne sont plus valides. Néanmoins un accord qualitatif entre les simulations numériques et les mesures montre que ce montage est valide pour obtenir des images thermiques d'objets nanostructurés isothermes.

Les deux dernières méthodes ne proposent pas de solution pour obtenir le spectre du rayonnement de champ proche. Pour y remédier la méthode utilisée est d'associer la pointe à un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier. Normalement un spectromètre à transformée de Fourier utilise un interféromètre de Michelson pour moduler le signal de référence envoyé par une source avant que celui n'atteigne l'échantillon puis le détecteur. Huth *et al.* ont modifié le dispositif pour l'adapter à l'imagerie de champ proche en plaçant la pointe et l'échantillon dans un des bras de l'interféromètre, le rendant asymétrique (voir la figure 1.18) [51]. Le rayonnement provenant de la source de référence est focalisé sur la pointe qui renvoie le rayonnement reçu en y intégrant celui du champ proche. Le tout interfère avec le signal de référence avant d'être envoyé sur le détecteur MCT avant de subir aussi une démodulation par détection synchrone. Cette méthode permet d'augmenter l'amplitude du signal émis par la pointe. Les résultats montrent une résolution spatiale identique aux travaux précédents mais permettent aussi d'obtenir l'intensité spectrale du

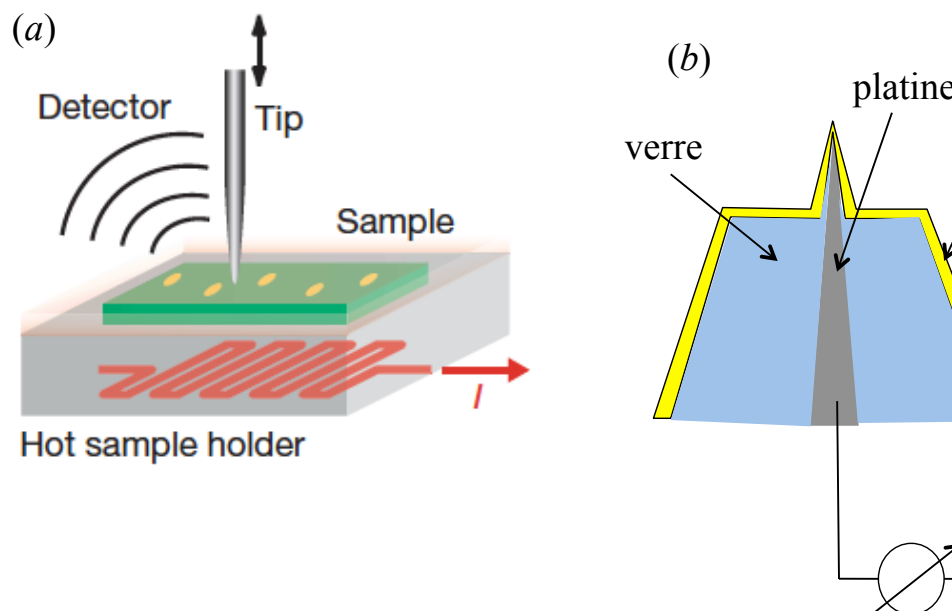


Figure 1.17 – (a) Schéma expérimental du microscope thermique de champ proche. La pointe diffracte le champ proche en champ lointain vers le détecteur. Ses oscillations modulent le signal utile qui sera récupéré via une détection synchrone (figure reprise de la référence [31]). (b) Pointe de microscope thermique de champ proche amélioré par Kittel et al.. Un thermocouple entre la surface d'or et la pointe de platine permet de mesurer le transfert thermique.

rayonnement de champ proche soit en large bande (en envoyant un signal de référence avec une source continue) soit pour une longueur d'onde définie en utilisant un laser CO_2 . Ces informations précises sur la fréquence de résonance des ondes de surface donnent la possibilité de visualiser les modifications des matériaux en surface. Il n'est pas obligatoire d'utiliser un interféromètre asymétrique, Jones *et al.* ont aussi mesuré le rayonnement de champ proche en utilisant un spectromètre plus conventionnel sans source de référence avec des résultats similaires [57]. Cependant l'échantillon ou la pointe ont besoin d'être chauffés à quelques centaines de degrés.

1.3.6 L'écriture des données informatiques assistée par rayonnement thermique

Depuis les années 50 de nouvelles technologies ont permis d'améliorer sensiblement le stockage des données informatiques comme le développement de couches minces ou la découverte de la magnétorésistance géante. Les densités de stockage de données ont atteint 750 Tb.m^{-2} , ce qui représente la moitié de la limite théorique de stockage pour des matériaux à mémoire magnétique [18]. L'augmentation de la densité de stockage est limitée par la diminution

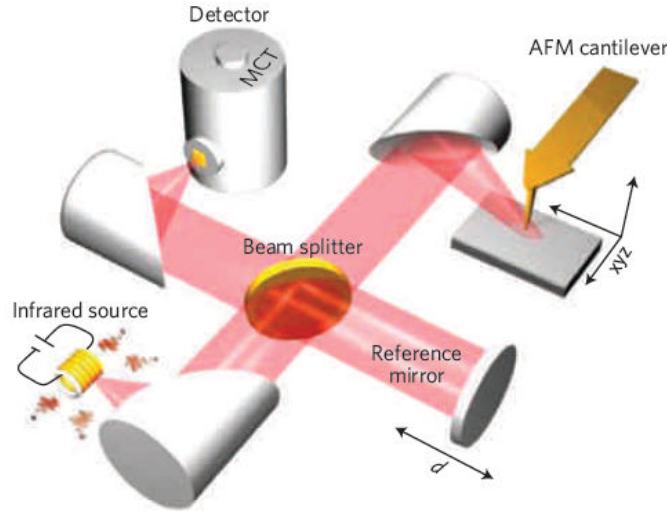


Figure 1.18 – Montage expérimental d'imagerie de champ proche où l'échantillon avec la pointe est placé dans un bras de l'interféromètre de Michelson (figure reprise de la référence [51]).

de la taille des grains magnétiques. En effet l'information est codée grâce à la variation de l'aimantation des grains magnétiques, cette modification étant réalisée grâce à l'application d'un fort champ magnétique très localisé sur le grain où l'on cherche à écrire une donnée. Plus la taille du grain est faible plus son état magnétique sera thermiquement instable, ce qui peut poser rapidement des problèmes de fiabilité de l'écriture. Il est alors nécessaire de passer à des matériaux ayant de fortes anisotropies magnétiques avec des tailles de grain de l'ordre de 2 à 3 nm. Ceci ouvre la voie à une densité de stockage possible de l'ordre de la centaine de Pb.m^{-2} . Cependant le champ coercitif de ces matériaux (champ magnétique nécessaire pour modifier l'aimantation) est plus important que pour les matériaux magnétiques utilisés jusqu'à présent, il dépasse même le champ maximal généré par une tête d'écriture classique. Pour y remédier il faut chauffer le matériau afin que sa température dépasse la température de Curie pour laquelle le champ coercitif devient presque nul (voir la figure 1.19). Mais ce chauffage doit se faire sur des surfaces très faibles, de l'ordre de la dizaine de nanomètres de côté, donc inférieures à la limite de diffraction (afin de chauffer puis d'écrire la donnée uniquement sur le grain considéré et non sur les voisins) et pour des temps très courts de l'ordre de la nanoseconde (pour assurer une vitesse d'écriture adéquate).

La solution est venue du rayonnement de champ proche, mais cette fois-ci du

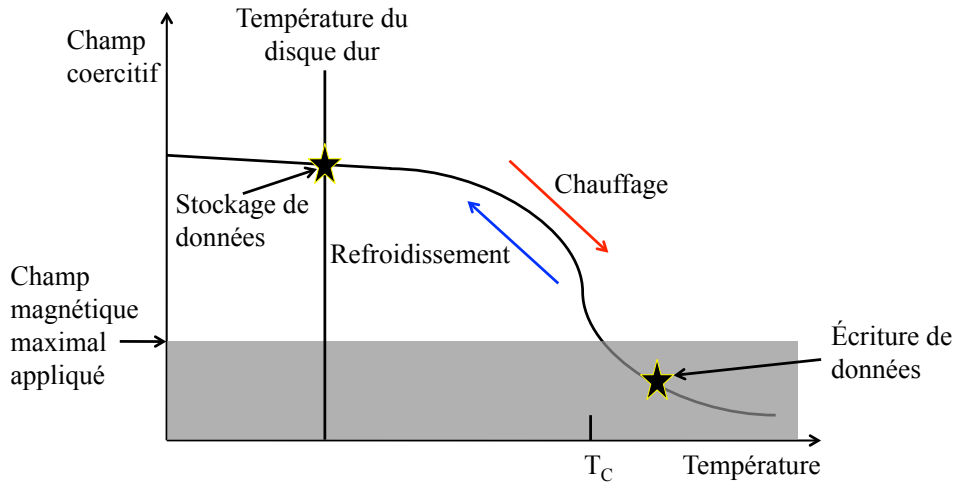


Figure 1.19 — Tracé de principe du champ coercitif en fonction de la température. L'élévation de la température du matériau magnétique permet de diminuer le champ coercitif et ainsi de procéder à l'écriture de données sans devoir augmenter le champ magnétique émis par la tête d'écriture.

rayonnement de champ proche dans le visible qui implique les plasmons de surface. Ces résonances vont être générées au niveau d'un transducteur et vont se coupler avec la fine couche de matériau magnétique. Ce couplage va provoquer une augmentation localisée du champ électrique dans la couche à écrire qui va se dissiper sous forme de chaleur. Une fois que le grain est chaud, le transducteur laisse place à la tête d'écriture (figure 1.20). L'équipe de Challenner *et al.* a réussi à concevoir un tel système avec une largeur de pistes de 70 nm et une densité de stockage des données de l'ordre de 375 Tb.m^{-2} [18]. Ce domaine a un fort potentiel industriel, de nombreux brevets ont été déposés notamment sur la conception du transducteur à champ proche [20] [19] et sur les méthodes de refroidissement de la couche de matériau magnétique grâce à des nanostructures [105].

La course à l'augmentation de la densité de mémoire électronique passe aussi par l'étude de nouveaux matériaux pouvant supporter l'information comme les matériaux à changement de phase. L'étude de ces matériaux est plus éloignée du rayonnement de champ proche mais fait partie des applications induites par le développement des nano-transferts thermiques. Ceux-ci possèdent la pro-

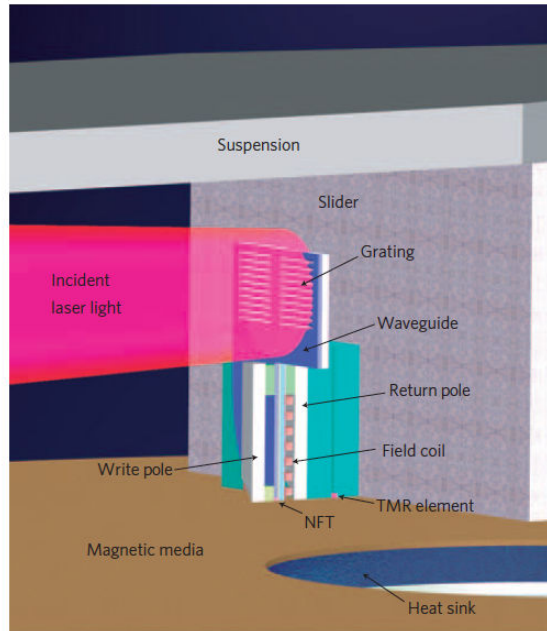


Figure 1.20 – Montage expérimental d'écriture de données assistée par rayonnement de champ proche. Le rayonnement laser incident est couplé via un réseau à un transducteur de champ proche (noté NFT dans le schéma pour near-field transducer). Ce transducteur permet de chauffer localement la couche mince magnétique avant que celle-ci ne subisse le champ magnétique de la tête d'écriture suivant immédiatement le transducteur (figure reprise de la référence 18).

priété d'avoir une résistance électrique et thermique qui varie énormément et rapidement lors de leurs transitions de phase amorphe-cristallin. Même si ce type de matériaux est connu depuis les années 60, peu répondent à tous les critères nécessaires à la technologie de stockage de données comme par exemple le chalcogénure $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$. Le passage à l'état amorphe est réalisé par un pulse de chaleur d'une durée de l'ordre de 10 ns avec une température supérieure à 600°C suivi d'un refroidissement rapide (10^9 K.s^{-1}). La recristallisation se fait via un pulse plus long (100 ns) avec une température plus faible à 200°C [46]. Le stockage des données se fait donc grâce à une focalisation d'une diode laser pour chauffer la petite zone (de quelques dizaines de nanomètres de côté) contenant le bit d'information et aussi pour la lire (en chauffant à une température plus faible). L'écriture peut se faire via une pointe de microscope à force atomique qui focalise la lumière de la diode laser ou à l'aide d'un nano-chauffeur composé d'une couche mince de platine de 25 nm d'épaisseur. La densité reste pourtant limitée par la diffraction du point de focalisation du laser mais aussi par la capacité maximale théorique de ce type de matériaux qui n'est pas encore bien estimée. En effet les mécanismes de transition de phase ne sont pas encore bien

compris [46 et 119]. En outre, plus on augmente la densité de données inscrites, plus leur destruction avant réécriture implique un chauffage plus important et donc de nouvelles difficultés technologiques. Néanmoins les travaux de Hamann *et al.* ont permis de montrer que cette technologie atteint des vitesses de lecture/écriture de l'ordre de 100 MHz et de 10 MHz pour la suppression de données avec des densités de l'ordre de 13 Pb.m^{-2} [46]. Pour les lecteurs intéressés par plus de détails, Wong *et al.* proposent une revue complète sur le sujet [119].

1.4 Mise au point d'un guide d'ondes de chaleur : stratégie et démarche générale du travail de thèse

Cette partie introductive a présenté diverses applications impliquant les transferts de chaleur aux nano-échelles. L'étude de cette discipline permettra de faire sauter de nombreux verrous technologiques. Le cas particulier du rayonnement de champ proche est très intéressant car il possède d'énormes potentiels (densité énergétique très grande, monochromaticité, confinement de l'énergie ou au contraire émission très directionnelle...). Néanmoins le transfert radiatif par champ proche n'a pour l'instant été étudié que pour des transferts d'énergie perpendiculaires aux interfaces qui est limité à des distances inférieures au micron. Dans ce travail de thèse nous nous sommes intéressés à la propagation des ondes de surface le long de l'interface, l'objectif étant d'augmenter la longueur de propagation longitudinale pour augmenter le transfert de chaleur dans cette direction. La propagation longitudinale atteint déjà quelques micromètres pour des surfaces planes, et nous verrons par la suite que celle-ci peut être augmentée de plusieurs ordres de grandeur. De plus ces ondes doivent appartenir au moyen infrarouge pour être compatibles au transport thermique à température ambiante.

L'idée d'augmenter la propagation longitudinale d'ondes de surface dans le moyen infrarouge ou plus précisément de phonon-polaritons de surface (PPS) nous a amené à considérer des structures cylindriques creuses (tubes). En effet cette géométrie permet un couplage entre ondes de surface à l'intérieur du tube favorisant leur propagation à des distances très supérieures à celles connues auparavant. La conception d'un tel tube autoriserait le développement de guides d'ondes de chaleur par analogie avec les fibres optiques. Ce type de guide d'ondes trouverait sa voie parmi les possibilités étudiées de refroidir les microprocesseurs par exemple.

Le choix du matériau est conditionné par la présence d'ondes de surface : il doit donc être polaire et diélectrique. En outre ces ondes doivent appartenir au moyen infrarouge aux alentours de $10 \mu\text{m}$, longueur d'onde de l'émission maximale de la loi de Planck à température ambiante. Le verre possède ces qualités, en plus d'être peu coûteux. Il est aussi possible de modifier facilement la taille de tubes en verre grâce à une étireuse qui les chauffe au-dessus de la

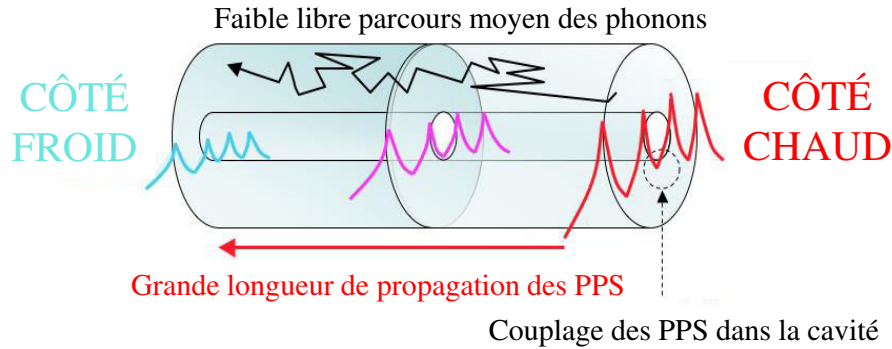


Figure 1.21 – Schéma de principe du guide d'ondes de chaleur.

température de transition vitreuse aux alentours de 1000°C .

La suite de ce manuscrit va s'attacher à démontrer théoriquement et expérimentalement l'augmentation de la longueur de propagation de PPS et donc du transfert radiatif de champ proche dans des tubes de verre. Le travail théorique commencera par des précisions sur la définition du PPS dans le cas où l'amortissement du milieu ne peut pas être négligé (constante diélectrique complexe) ce qui est le cas du verre. Puis suivra le calcul de la relation de dispersion en géométrie cylindrique permettant de connaître les fréquences de résonance du PPS, leurs dépendances à la géométrie et surtout la longueur de propagation longitudinale de ces ondes avec leurs optimisations. Cette base permettra de calculer l'énergie transportée par ce système ainsi que sa conductivité thermique confirmant ses performances attendues.

La démonstration expérimentale de ces résultats se fonde sur la diffraction des PPS à la pointe du tube. En effet comme ces ondes sont évanescentes, celles-ci ne peuvent pas être observées directement en champ lointain sauf si elles sont diffractées. L'émission du tube de verre chauffé va être collectée par un microscope infrarouge couplé à un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR). Le spectre d'émission obtenu pourra prouver une augmentation du signal pour la fréquence de résonance du PPS diffracté. Cette expérience permet d'établir une nouvelle méthode de détection du PPS. En outre les variations de l'émission du tube suivant sa taille offrent les moyens de confirmer les calculs d'optimisation du transfert radiatif de champ proche du tube.

Chapitre 2

Définition du phonon-polariton de surface

Après avoir donné un aperçu général des travaux menés sur les transferts thermiques aux nano-échelles et plus particulièrement ceux impliquant le rayonnement de champ proche, nous allons nous intéresser à un type de résonance de surface spécifique qui est le phonon-polariton de surface. Cette onde de surface est un cas particulier du rayonnement de champ proche qui est le coeur de notre étude. Nous allons donc définir en détail cette onde de surface en partant de son origine physique puis en la caractérisant à l'aide des équations de Maxwell. La relation de dispersion constitutive de ce rayonnement ainsi présentée nous permettra de discuter de ses conditions d'existence dans le cas d'une interface plane.

2.1 Définition et interprétation physique

Le phonon-polariton de surface est le résultat du couplage entre un phonon et un photon dans le cas particulier d'une résonance de surface. Pour mieux appréhender la nature de cette pseudo-particule, il est important de comprendre en détail ses éléments constitutants que sont le phonon d'une part et le photon d'autre part. En outre on précisera la différence entre le phonon-polariton de volume et celui de surface pour saisir les origines physiques et les propriétés intrinsèques du phonon-polariton de surface.

2.1.1 Le premier acteur : le phonon

Un phonon est une pseudo-particule permettant de décrire la propagation des vibrations du réseau cristallin comme la propagation d'une particule. On parle de quantum d'énergie de vibration du réseau cristallin. Il est décrit par sa fréquence ω et son vecteur d'onde k . Le calcul de ces deux composantes est appelé calcul de la relation de dispersion du phonon. Pour ce faire on considère

N atomes reliés les uns aux autres par des ressorts (voir la figure 2.1). On suppose que chaque atome interagit uniquement avec son plus proche voisin si bien que l'équation du mouvement (seconde loi de Newton) appliquée à chacun des atomes sauf aux extrémités donne :

$$M \frac{d^2 u(na)}{dt^2} = -K[2u(na) - u((n-1)a) - u((n+1)a)] \quad (2.1)$$

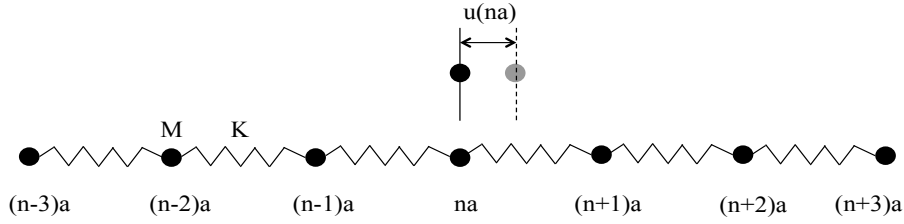


Figure 2.1 – L'approximation harmonique du cristal monoatomique unidimensionnel est illustrée par une chaîne d'atomes de masse M reliés par des ressorts parfaits de raideur K . La position à l'équilibre de chaque atome est un multiple du paramètre de maille a .

pour un atome situé au point na (n entier) et espacé de la distance a de ses plus proches voisins, avec M la masse de l'atome, K la constante de raideur du ressort et u son déplacement. Le comportement des atomes d'extrémité importe peu et complique l'analyse sans modifier le résultat final. C'est pourquoi les conditions aux limites périodiques de Born-von Karman sont utilisées pour résoudre ce problème. Celles-ci précisent que le déplacement u est périodique de période N d'où :

$$u((N+1)a) = u(a) \text{ et } u(Na) = u(0). \quad (2.2)$$

Les solutions recherchées sont de la forme $u(na, t) \propto e^{i(kna - \omega t)}$. La résolution de l'équation (2.1) avec cette forme de solution aboutit à la relation de dispersion [3] :

$$\omega(k) = 2\sqrt{\frac{K}{M}} \sin\left|\frac{1}{2}ka\right| \quad (2.3)$$

Dans le cas monoatomique, on ne trouve qu'une seule branche de dispersion. Si on considère un cristal ionique comportant deux ions par maille primitive de même masse (les résultats sont similaires en prenant une chaîne diatomique avec des masses différentes mais des ressorts identiques), la même étude fournit une relation de dispersion de la forme [3] :

$$\omega^2 = \frac{K+G}{M} \pm \frac{1}{M} \sqrt{K^2 + G^2 + 2KG \cos(ka)} \quad (2.4)$$

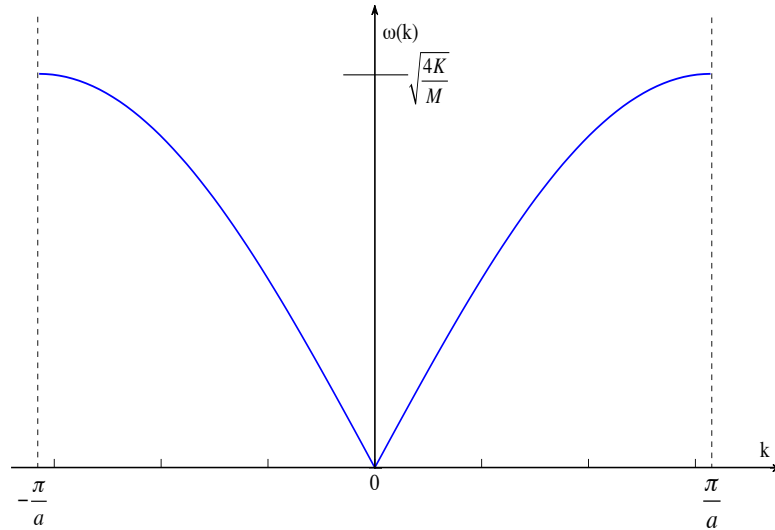


Figure 2.2 — Courbe de dispersion des phonons d'un cristal monoatomique en ne prenant en compte que les interactions avec les plus proches voisins.

avec K et G constantes de raideur des ressorts qui alternent (voir la figure 2.3). Cette équation possède deux solutions correspondant aux valeurs positives de ω . Ces deux solutions fournissent deux branches de dispersion : l'une à plus basse fréquence appelée branche acoustique et l'autre à plus haute fréquence appelée branche optique (voir la figure 2.4). La branche acoustique a la même forme que la relation de dispersion du cristal monoatomique. La branche optique est nommée ainsi car ce sont ces phonons (surtout ceux de grande longueur d'onde) qui peuvent interagir avec le rayonnement électromagnétique. Les comportements optiques des cristaux ioniques sont en grande partie liés aux propriétés des phonons optiques. En effet un mode optique (couple ω et k correspondant à un phonon) produit un moment dipolaire non nul entre ions et pourra donc être excité par un rayonnement électromagnétique incident ayant une fréquence et un vecteur d'onde adaptés. Ceci n'est pas le cas des modes acoustiques pour lesquels les ions en phase ont un mouvement collectif (voir la figure 2.5).

Les phonons sont aussi décrits par leur caractère transverse ou longitudinal. Le mouvement des atomes ou des ions sera perpendiculaire au vecteur d'onde du phonon si celui-ci est transverse alors qu'il sera longitudinal si les vibrations du réseau cristallin sont colinéaires au vecteur d'onde (voir la figure 2.6). Pour un cristal monoatomique il existe en fait trois branches de dispersion acoustiques (deux transverses et une longitudinale). A cela il faut ajouter trois branches optiques pour un cristal diatomique (par exemple un cristal ionique) aussi composées de deux transverses et une longitudinale. De manière générale si un cristal possède p atomes dans sa maille primitive, il possèdera toujours 3

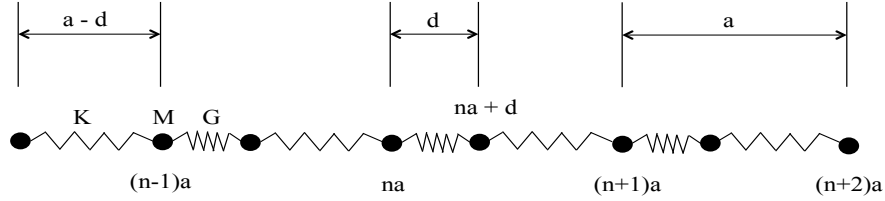


Figure 2.3 – Chaîne d'oscillateurs diatomiques avec des atomes de masse identique mais des ressorts de raideurs différentes. Les positions d'équilibre des atomes sont na et $na+d$.

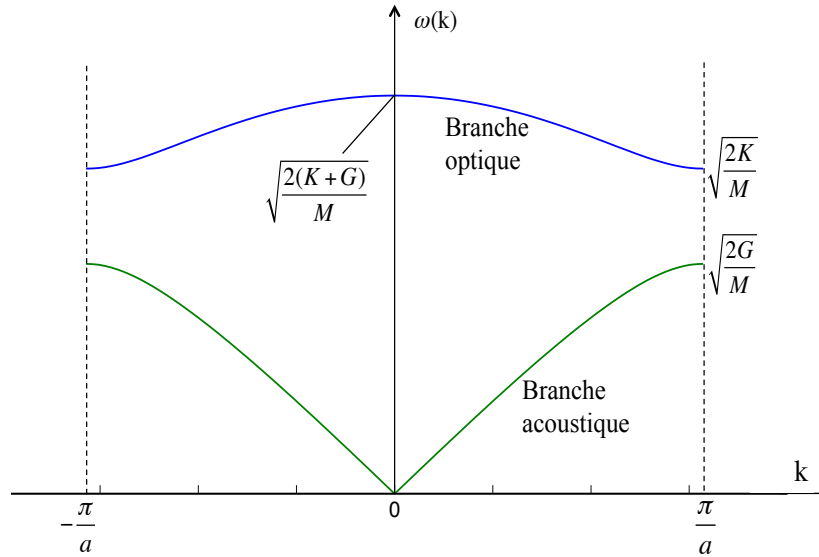


Figure 2.4 – Courbe de dispersion des phonons dans un cristal diatomique. La branche inférieure (acoustique) est similaire à celle du cristal monoatomique, la branche supérieure est celle des phonons optiques.

branches acoustiques mais présentera aussi $3p - 3$ branches optiques.

2.1.2 Le deuxième acteur : le photon donnant naissance au polariton

Passons maintenant à l'interaction entre un rayonnement électromagnétique incident sur le cristal et les phonons optiques. Tout d'abord les phonons concernés ont une longueur d'onde très grande (donc $\mathbf{k} \approx \mathbf{0}$) car les photons ayant une fréquence proche de celle des phonons optiques, ont un vecteur d'onde très faible en comparaison. En effet ces vecteurs d'onde n'atteignent en module que

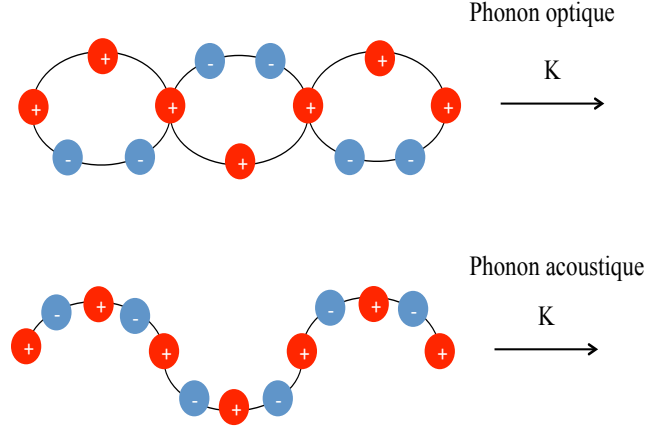


Figure 2.5 – Schéma de phonons optique et acoustique se propageant dans un cristal ionique pour une polarisation transverse. Le mouvement en opposition de phase des ions de charge opposée du phonon optique permet à celui-ci d’être excité par un rayonnement électromagnétique incident.

quelques centaines ou milliers de cm^{-1} quand ceux des phonons atteignent des valeurs de l’ordre de 10^9 cm^{-1} en bord de zone de Brillouin. Les déplacements des ions de charges opposées ont lieu dans des directions opposées entraînant l’apparition d’une polarisation $\mathbf{P}$ dans le milieu si bien que le vecteur déplacement $\mathbf{D}$ s’écrit dans le milieu :

$$\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E} = \mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P}. \quad (2.5)$$

En l’absence de charges libres on a :

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0 \quad (2.6)$$

et dans l’approximation électrostatique on peut aussi écrire :

$$\nabla \wedge \mathbf{E} = \mathbf{0}. \quad (2.7)$$

On suppose de plus que le cristal est isotrope et donc que $\mathbf{D}$ est colinéaire à $\mathbf{E}$ ainsi qu’à $\mathbf{P}$. On considère que les trois grandeurs ont une dépendance spatiale en $e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ de sorte qu’ils s’expriment de la façon suivante :

$$\mathbf{D} = \mathbf{D}_0 e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (2.8)$$

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (2.9)$$

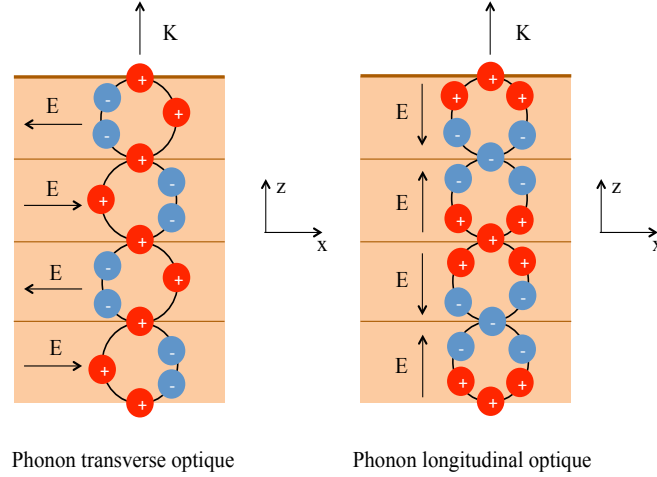


Figure 2.6 – Schéma de phonons transverse et longitudinal optiques. Les signes plus et moins représentent les barycentres des charges positives et négatives respectivement. Les vibrations des dipôles sont perpendiculaires au vecteur d'onde dans le cas du phonon transverse alors qu'ils sont parallèles à celui-ci quand le phonon est longitudinal. Le champ électrique ainsi créé n'aura pas la même direction.

et

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}_0 e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}. \quad (2.10)$$

L'équation (2.6) s'écrit alors :

$$\mathbf{k} \cdot \mathbf{D}_0 = 0, \quad (2.11)$$

ce qui requiert

$$\mathbf{D} = \mathbf{0} \quad (2.12)$$

ou que $\mathbf{D}$, $\mathbf{E}$ et $\mathbf{P}$ sont perpendiculaires à $\mathbf{k}$. L'équation (2.7) se réduit de la même manière à :

$$\mathbf{k} \wedge \mathbf{E}_0 = \mathbf{0}, \quad (2.13)$$

ce qui requiert

$$\mathbf{E} = \mathbf{0} \quad (2.14)$$

ou que $\mathbf{E}$, $\mathbf{D}$ et $\mathbf{P}$ sont parallèles à $\mathbf{k}$. Ces deux conditions doivent être respectées par les modes optiques. Si ceux-ci sont longitudinaux, alors la polarisation $\mathbf{P}$

(non nulle) est parallèle à $\mathbf{k}$. Il se déduit des conditions précédentes que le vecteur déplacement est nul. On obtient donc pour le mode longitudinal :

$$\mathbf{E} = -4\pi\mathbf{P} \text{ et } \epsilon = 0. \quad (2.15)$$

Si le mode considéré est transverse alors la polarisation $\mathbf{P}$ est perpendiculaire à $\mathbf{k}$, dans ce cas c'est le champ électrique qui s'annule. Cependant comme le vecteur déplacement n'est pas nul à cause de la polarisation intrinsèque du milieu, l'équation (2.5) n'est vérifiée que si ϵ est infini. Cette étude nous permet d'affirmer que la fréquence du mode optique transverse (couplage entre photon et phonon optique transverse) de grande longueur d'onde a lieu pour ω_T telle que $\epsilon(\omega_T) = \infty$. De même la fréquence du mode optique longitudinal a lieu pour ω_L telle que $\epsilon(\omega_L) = 0$. C'est le cas du carbure de silicium par exemple (voir la figure 2.7).

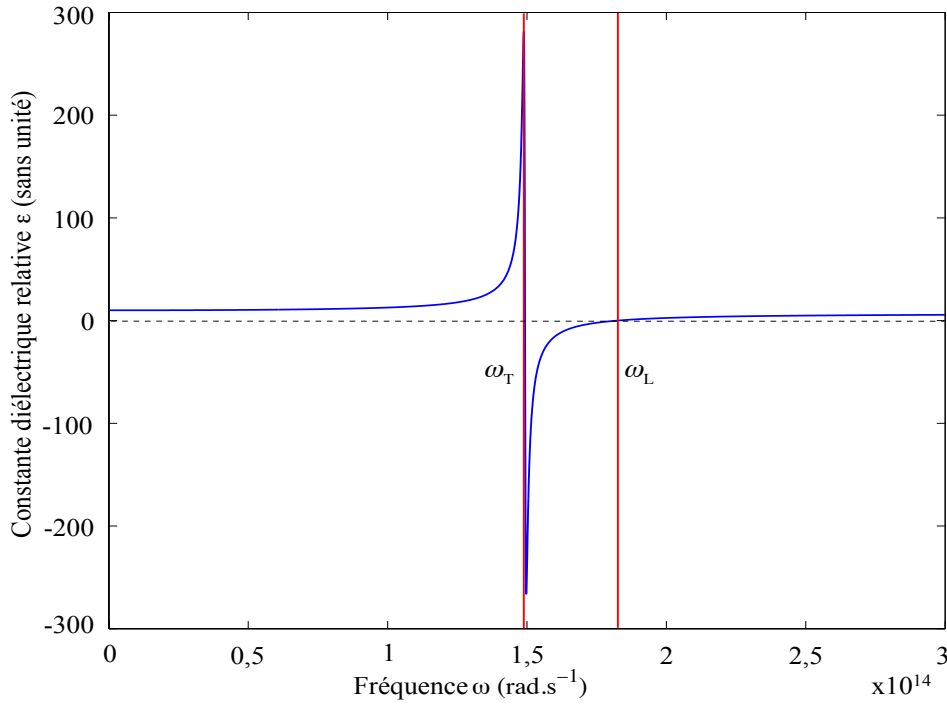


Figure 2.7 – Représentation de la constante diélectrique du carbure de silicium en fonction de la fréquence en négligeant les pertes. Les fréquences ω_T et ω_L sont mises en évidence et vérifient bien les conditions $\epsilon = \infty$ et $\epsilon = 0$. Les lignes rouges verticales correspondent à $\omega_T = 14,93 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ et à $\omega_L = 18,24 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$

Ce raisonnement amène à une interprétation physique des fréquences des phonons transverses et longitudinaux de cristaux ioniques. Néanmoins celui-ci n'est pas tout à fait exact car il suppose que l'interaction coulombienne agit instantanément entre les ions du réseau (approximation électrostatique). Or l'interac-

tion coulombienne se propage à une vitesse finie, celle de la lumière. Toutefois le raisonnement concernant les modes optiques longitudinaux s'appuyant sur l'équation (2.6) reste valide car il ne fait pas intervenir l'approximation électrostatique. Par contre l'équation (2.7) doit être modifiée sous la nouvelle forme suivante [3] :

$$\nabla \wedge \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}. \quad (2.16)$$

Dans ce cas les modes optiques transverses de grande longueur d'onde donnent naissance à un champ électrique et magnétique transverse [73]. Ce champ agit en retour sur les modes transverses en modifiant leurs fréquences. Ces modifications des modes transverses perturbent à leur tour la relation de dispersion du champ électromagnétique transverse se propageant dans le cristal. En conséquence les modes transverses de fréquence ω et de vecteur d'onde $\mathbf{k}$ ne peuvent se propager que si :

$$\epsilon(\omega) = \frac{k^2 c^2}{\omega^2}. \quad (2.17)$$

Le système étudié est donc celui de deux oscillateurs couplés, à savoir le champ électromagnétique transverse et le champ de polarisation des modes de vibration optique du cristal. Les modes propres de ce système photon-phonon sont appelés phonon-polaritons, et ils ont pour relation de dispersion l'équation (2.17). Il est très important de noter que le phonon-polariton est le résultat du couplage entre un phonon optique transverse et un champ électromagnétique transverse, ceci lui procure des propriétés de polarisation particulières qui sont utiles pour le détecter expérimentalement.

Le tracé de la relation de dispersion du phonon-polariton est indiqué en figure 2.8. Une bande interdite apparaît entre les fréquences ω_T et ω_L dans laquelle aucun rayonnement ne peut se propager. En effet pour ces fréquences, la constante diélectrique ϵ est négative, ce qui implique un vecteur d'onde imaginaire. Ce phénomène correspond à une réflectivité maximale pour des cristaux ioniques (voir exemple en figure 2.9). Cependant notre étude va maintenant se concentrer sur cette bande interdite qui peut supporter des phonon-polaritons : ce seront des phonon-polaritons de surface contrairement à ceux que nous avons décrits jusqu'à maintenant appelés phonon-polaritons de volume.

2.1.3 Le couplage phonon-photon dans la bande interdite du polariton de volume : le phonon-polariton de surface

Cette sous-partie va donner une première image physique du phonon-polariton de surface (PPS) afin de définir cette pseudo-particule sans recourir aux équations de Maxwell. Pour cela considérons un phonon optique transverse se propageant sous la forme d'une onde plane dans un milieu polaire diélectrique associé à une polarisation macroscopique $\mathbf{P} = \mathbf{P}_0 e^{i(\mathbf{k}\mathbf{x} - \omega t)}$ comme l'illustre la

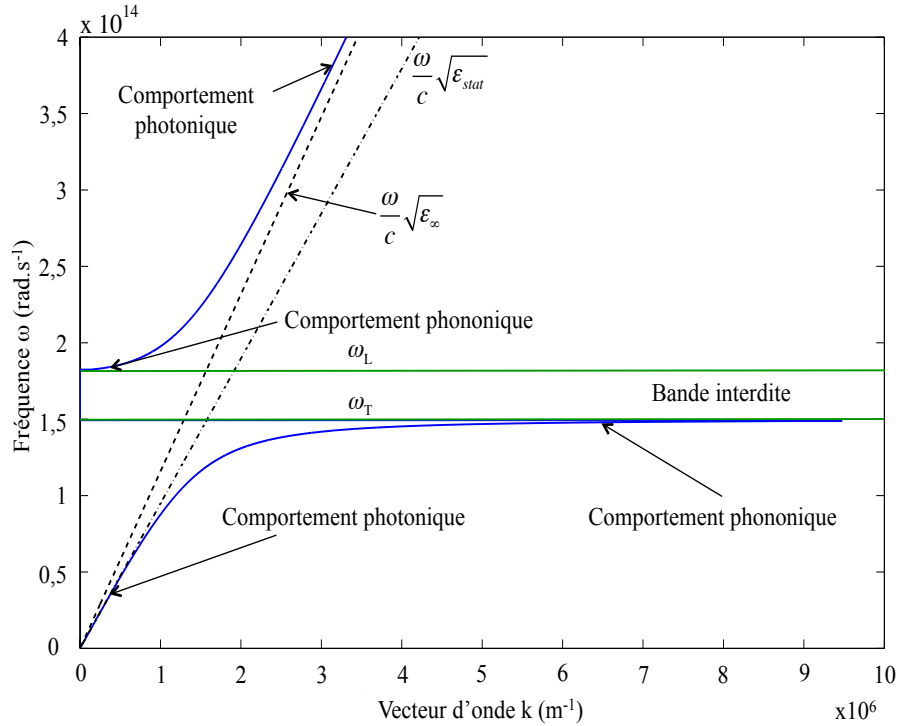


Figure 2.8 – Tracé de la relation de dispersion du phonon-polariton dans le cas du carbure de silicium. Une bande interdite apparaît entre les fréquences ω_T et ω_L pour lesquelles il n'existe pas de phonon-polariton de volume. Le couplage photon-phonon présente un comportement très proche d'un phonon optique au voisinage des fréquences ω_T et ω_L où la relation de dispersion est plate. Par contre il se rapproche d'un photon lorsque celle-ci devient linéaire en se rapprochant d'une des deux lignes de lumière en pointillés. Cette différence de comportement très tranchée a poussé certains chercheurs à appeler polaritons les zones courbes où les modes sont de natures mixtes [3].

figure 2.10 (a). Le milieu étant diélectrique, le champ électrique macroscopique ne peut exister sans couplage avec des photons de ce mode optique. Maintenant en ajoutant une interface avec un matériau non dispersif, qui soit perpendiculaire à la direction de polarisation, il va évidemment apparaître une discontinuité de cette même polarisation (voir la figure 2.10 (b)). Cette discontinuité va créer une densité de charge périodique dont les champs électriques associés auront des composantes non nulles suivant $\mathbf{x}$ et $\mathbf{y}$ alors que par symétrie des charges surfaciques suivant $\mathbf{z}$, la composante du champ électrique est nulle suivant cette même direction. L'alternance des signes de la densité de charges surfaciques conduit à la décroissance de l'amplitude du champ électrique associé lorsque le module de l'ordonnée $\mathbf{z}$ augmente. L'onde reste donc confinée à l'interface. De plus comme les charges surfaciques sont la seule source du champ électrique, l'interface sera un plan d'antisymétrie : les composantes suivant $\mathbf{y}$

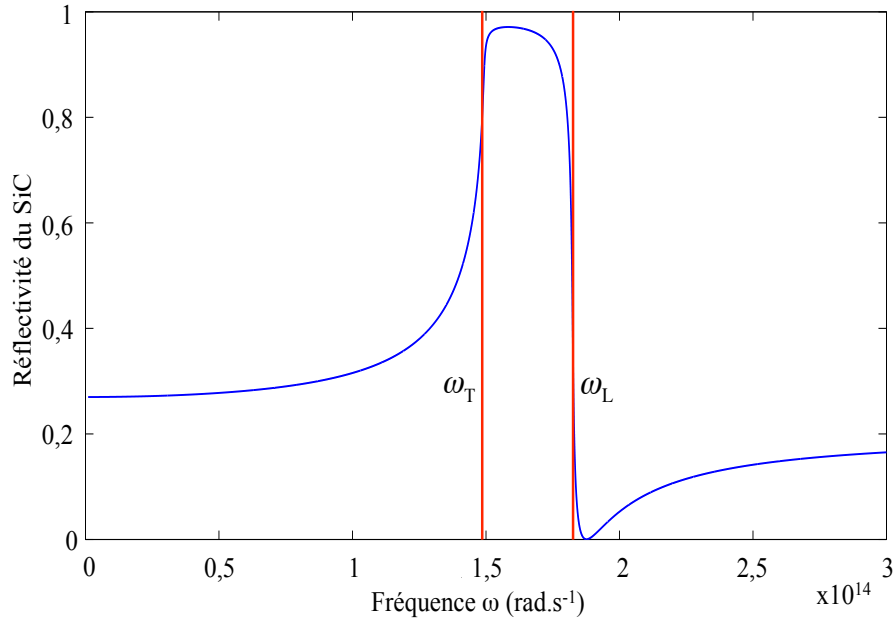


Figure 2.9 – Réflectivité du carbure de silicium en fonction de la fréquence. La bande interdite du phonon-polariton de volume correspond à une zone de fréquence où la réflectivité du matériau est maximale. Le rayonnement électromagnétique incident reste confiné en surface favorisant le développement de PPS.

du champ en des points équidistants de la surface dans chaque milieu auront la même amplitude mais des signes opposés. En appliquant la condition aux limites sur les composantes normales du vecteur déplacement $\mathbf{D}_{n1} = \mathbf{D}_{n2}$, ϵ_1 devient égal à $-\epsilon_2$ en négligeant les effets de la dispersion. Cette condition sur les constantes diélectriques des deux milieux est une des conditions de base bien connues de l'existence des PPS sur laquelle nous reviendrons.

Le milieu 1 étant non dispersif et sa constante diélectrique positive, on remarque alors que cette condition impose à ces effets de surface une fréquence de résonance entre ω_T et ω_L . Cependant l'excitation des dipôles électriques de surface crée un champ électrique statique dont les composantes sont parallèles et normales à l'interface avec un déphasage de $\pi/2$ de l'une par rapport à l'autre. La dépendance temporelle résulte du couplage avec les photons du champ électromagnétique transverse, ajoutant aussi un champ magnétique suivant $\mathbf{z}$ à la pseudo-particule résultante. Le PPS provient donc du champ électromagnétique du photon couplé avec le champ électrostatique de la densité de charges surfaciques. La force de la contribution photonique d'une part et phononique d'autre part dépendra de la fréquence et du vecteur d'onde du PPS [15]. Enfin pour des

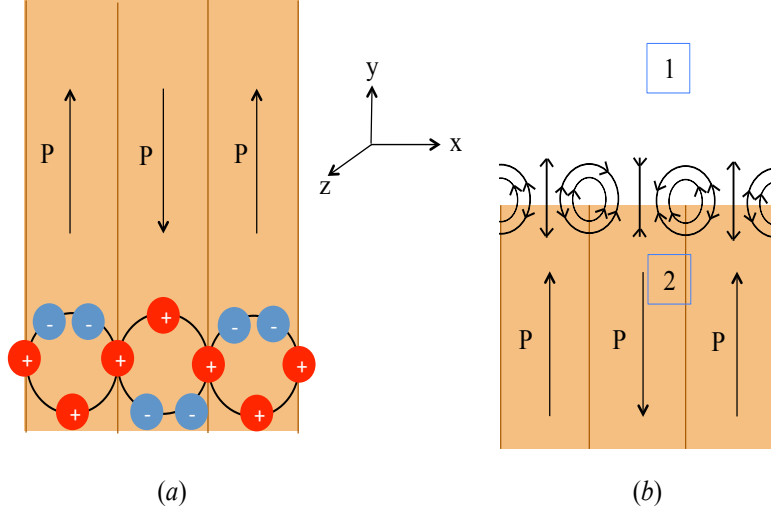


Figure 2.10 – (a) Schéma de la propagation d'une onde plane correspondant à un phonon transverse optique dans le milieu 2. L'onde se propage suivant l'axe x tandis que la polarisation est orientée selon l'axe y . (b) Schéma de la densité de charges surfaciques avec les lignes de courant du champ électrique associé lors de l'ajout de l'interface avec le milieu 1.

milieux isotropes, comme la seule composante non nulle du champ magnétique du PPS est suivant z , la polarisation de ce champ ne peut être que transverse. Le schéma de la figure 2.11 propose une image simplifiée du PPS se propageant à la surface d'un diélectrique polaire.

2.2 Relation de dispersion et conditions d'existence

Le calcul de la relation de dispersion permet de définir de manière mathématique le phonon-polariton de surface et de déterminer ses conditions d'existence. Cependant ce calcul a été présenté de très nombreuses fois dans le cas d'une interface plane en considérant que la constante diélectrique est réelle ou que sa composante imaginaire est négligeable devant sa partie réelle [15, 2, 96, 80]. Nous allons rappeler brièvement ce calcul avec ses principaux résultats avant de nous concentrer sur le cas où la constante diélectrique est complexe sans refaire les mêmes approximations. En effet nous nous intéressons à la propagation du PPS à une interface air-verre, et il n'est pas possible de mener les mêmes

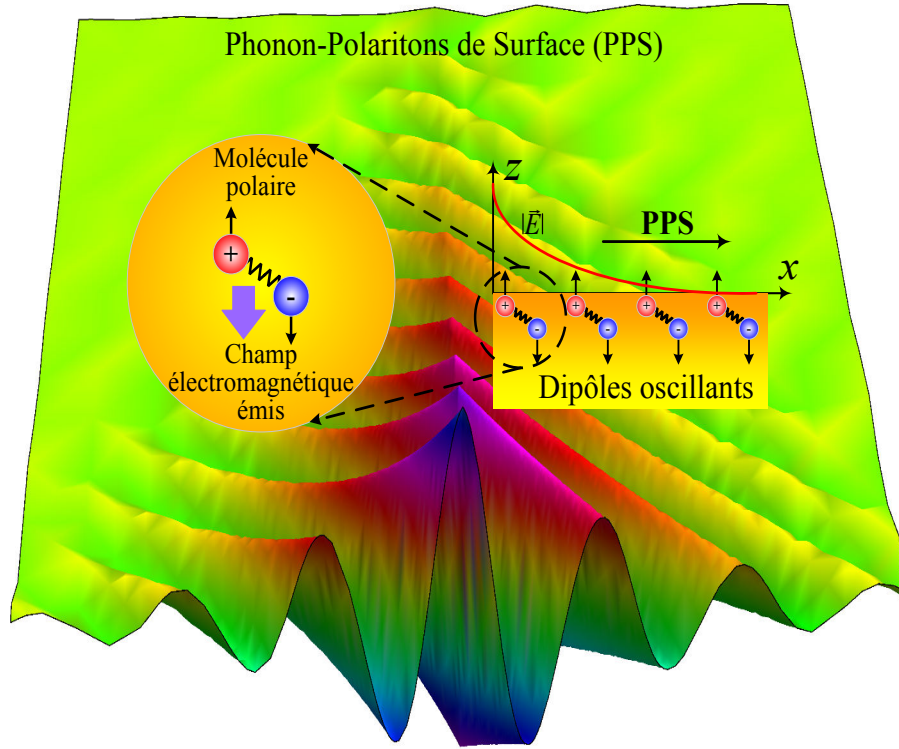


Figure 2.11 – Schéma illustratif du PPS résultant du couplage entre des phonons optiques et des photons modélisés par des dipôles oscillants émettant un champ électromagnétique. Cette résonance de surface crée une onde évanescente s'atténuant dans les 3 directions de l'espace.

approximations que celles faites précédemment dans l'étude de la relation de dispersion du PPS dans le verre.

2.2.1 Constante diélectrique réelle ou faiblement complexe

Dans cette partie nous reprenons les principaux résultats présentés par Raether *et al.* [96]. Le calcul y est réalisé dans le cas des plasmons de surface et il est tout à fait généralisable au cas des PPS. La propagation d'ondes de surface est considérée pour une interface entre un milieu polaire diélectrique dispersif et un milieu diélectrique non dispersif (voir schéma figure 2.12).

Ces ondes de surface électromagnétiques sont uniquement des ondes transverses magnétiques régies par l'équation de Helmholtz et dont on peut écrire la solution comme :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_1^0 e^{(-i(\beta x - \omega t) - p_1 z)} \text{ pour } z > 0 \quad (2.18)$$

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_2^0 e^{(-i(\beta x - \omega t) + p_2 z)} \text{ pour } z < 0 \quad (2.19)$$

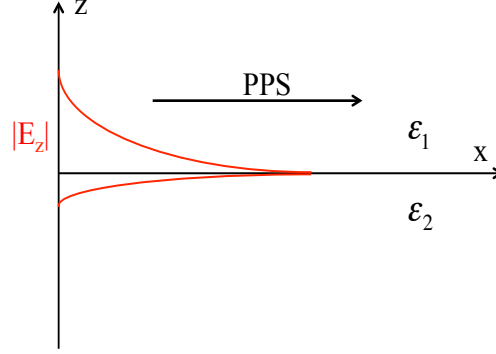


Figure 2.12 — Schéma de la propagation d'un PPS à l'interface entre un milieu dispersif 2 et un milieu non dispersif 1.

où p_1 et p_2 sont les composantes transverses du vecteur d'onde tandis que β est sa composante longitudinale. Ils vérifient la relation :

$$p_j^2 = \beta^2 - \left(\frac{\omega^2}{c^2} \right) \epsilon_j \text{ avec } j = 1, 2 \quad (2.20)$$

À partir des équations de continuité du champ électrique et magnétique à l'interface air/diélectrique on obtient l'équation :

$$\frac{\epsilon_1}{p_1} + \frac{\epsilon_2}{p_2} = 0 \quad (2.21)$$

Les deux équations précédentes permettent d'écrire la relation de dispersion :

$$\beta^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2} \quad (2.22)$$

Le milieu 1 étant non dispersif, sa constante diélectrique sera donc indépendante de la fréquence et positive (égale à 1 dans le cas de l'air). Si ϵ_2 dépend de la fréquence et qu'il est réel, et si l'amortissement des phonons et la dispersion spatiale sont négligés, les composantes transverses du vecteur d'onde $\mathbf{p}_1$ et $\mathbf{p}_2$ (leurs parties réelles) doivent être positives afin d'obtenir une solution qui s'atténue exponentiellement en s'éloignant de la surface. Ainsi pour que l'équation (4.2) soit satisfaite, il faut que ϵ_2 soit négatif.

Cette condition implique que, d'après l'équation (2.22), le terme $\epsilon_1 + \epsilon_2$ doit être négatif afin de rendre β réel et positif et de produire une onde progressive. En effet si ce terme était positif le carré de β serait négatif, ce qui correspondrait à un vecteur d'onde β imaginaire pur et l'onde résultante serait alors purement évanescence. La condition de non-nullité de la partie réelle de β amène à :

$$\epsilon_2 < -\epsilon_1. \quad (2.23)$$

Cette condition d'existence de modes propres de surface est réalisée pour des fréquences inférieures à la fréquence plasma dans le cas des métaux et pour des fréquences comprises entre ω_T et ω_L dans le cas de matériaux diélectriques. Si maintenant ϵ_2 est complexe ($\epsilon_2 = \epsilon'_2 - i\epsilon''_2$), dans ce cas β est aussi complexe et s'écrit d'après la relation de dispersion :

$$\beta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{(\epsilon'_2 - i\epsilon''_2)\epsilon_1}{\epsilon_1 + \epsilon'_2 - i\epsilon''_2}} = \frac{\omega}{c} a \sqrt{1 - ib} \quad (2.24)$$

$$\text{avec } a = \sqrt{\epsilon_1 \frac{\epsilon'_2(\epsilon_1 + \epsilon'_2) + \epsilon''_2{}^2}{(\epsilon_1 + \epsilon'_2)^2 + \epsilon''_2{}^2}} \quad (2.25)$$

$$\text{et } b = \frac{\epsilon_1 \epsilon''_2}{\epsilon'_2(\epsilon_1 + \epsilon'_2) + \epsilon''_2{}^2}. \quad (2.26)$$

En supposant de plus que $\epsilon''_2 \ll |\epsilon'_2|$, ce qui implique que $|b| \ll 1$, le vecteur d'onde β peut s'exprimer sous la forme :

$$\beta \approx \frac{\omega}{c} a \left(1 - \frac{ib}{2} \right). \quad (2.27)$$

Dans ce cas la partie réelle de β , β' s'écrit :

$$\beta'^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\epsilon_1 \epsilon'_2}{\epsilon_1 + \epsilon'_2} \quad (2.28)$$

et cette quantité n'est réelle que si $\epsilon'_2 < -\epsilon_1$ ou $\epsilon'_2 > 0$. Or la deuxième condition implique que les parties réelles de p_1 et p_2 soient négatives, le champ électrique étant alors divergent suivant la direction $\mathbf{z}$, ce qui n'est physiquement pas acceptable. On retrouve donc la même condition que précédemment avec l'hypothèse supplémentaire : $\epsilon''_2 \ll |\epsilon'_2|$. On voit une illustration de cette étude dans la relation de dispersion du PPS à une interface air-SiC représentée en figures 2.16 et 2.17. L'hypothèse de constante diélectrique faiblement complexe est valable pour l'étude de matériaux tels que le carbure de silicium (voir représentation des composantes réelle et complexe de ϵ pour le SiC en figure 2.15). Cependant avec d'autres matériaux tels que le verre, cette hypothèse n'est plus valable (voir la figure 2.19). Il est alors important de se poser la question des conditions d'existence du PPS dans ce type de matériaux.

2.2.2 Constante diélectrique complexe

Dans le cas où la constante diélectrique est complexe, l'équation (2.22) n'a plus de solution unique. En effet le vecteur d'onde β et la fréquence ω deviennent complexes. Il faut alors faire un choix de résolution en choisissant un vecteur

d'onde réel ou une fréquence réelle. Le choix de l'une ou l'autre des résolutions modifie la courbe de dispersion comme le montre le cas du SiC en figures 2.13 et 2.14. Dans le cas d'un vecteur d'onde réel, la courbe montre une asymptote à la fréquence de résonance du PPS. Cette asymptote disparaît dans le cas d'une fréquence réelle au profit d'un repliement de la courbe. Ce repliement relie d'ailleurs les deux branches de la courbe de dispersion qui étaient séparées dans le premier cas. Ces deux courbes peuvent être interprétées de la manière suivante : dans le premier cas, pour une fréquence complexe, le PPS est excité par une excitation impulsionnelle : la partie imaginaire de la fréquence correspond au temps de vie du PPS après l'arrêt de l'excitation. Dans le deuxième cas, pour un vecteur d'onde complexe, le PPS est excité continûment : la partie imaginaire du vecteur d'onde correspond à la longueur de propagation du PPS en s'éloignant de la source excitatrice. Il apparaît donc qu'un choix décrit le régime transitoire du PPS tandis que l'autre décrit son régime permanent [80]. Dans notre étude nous nous intéressons à des PPS stimulés thermiquement en régime permanent, nous avons donc choisi de résoudre la relation de dispersion avec un vecteur d'onde complexe dans les différentes géométries qui seront présentées.

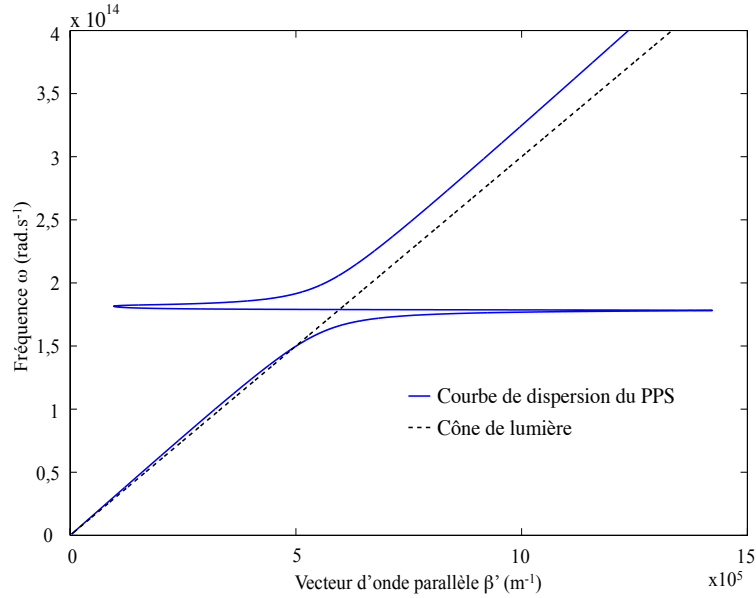


Figure 2.13 – Courbe de dispersion du PPS à l'interface SiC/air en prenant le vecteur d'onde β complexe ($\beta = \beta' - i\beta''$).

Reprenons le cas de l'interface plane tout d'abord. Nous cherchons à connaître les conditions d'existence de PPS à l'interface air-verre car la condition $\epsilon'_2 < -\epsilon_1$ nécessite un milieu sans pertes (dans la suite de l'étude nous prendrons $\epsilon_1 = 1$). Il faut revenir aux équations (2.18) et (2.19) avec les vecteurs d'onde complexes

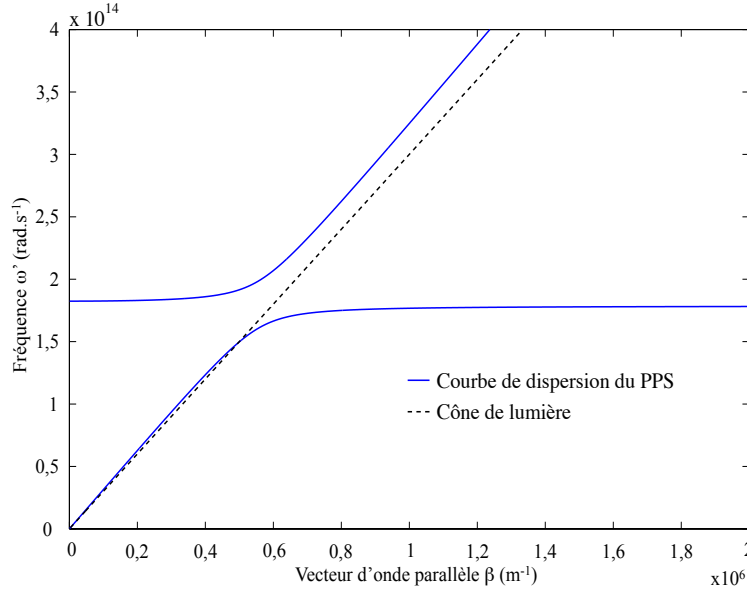


Figure 2.14 – Courbe de dispersion du PPS à l'interface SiC/air en prenant la fréquence ω complexe ($\omega = \omega' - i\omega''$).

s'écrivant :

$$\beta = \beta' - i\beta'', \quad (2.29)$$

$$p_1 = p'_1 - ip''_1 \text{ et} \quad (2.30)$$

$$p_2 = p'_2 - ip''_2. \quad (2.31)$$

Un PPS étant une onde de surface, son existence est conditionnée par le signe de la partie réelle du vecteur d'onde transverse p' : il faut que celle-ci soit positive pour assurer une décroissance exponentielle de l'onde en s'éloignant de la surface. Nous allons faire la démonstration pour p_1 étant donné que par symétrie les résultats seront identiques dans le milieu 2, ce qui donne :

$$p_1 = \sqrt{\beta'^2 - \beta''^2 - \frac{\omega^2}{c^2} - 2i\beta'\beta''}. \quad (2.32)$$

Nous écrivons l'égalité entre les parties réelles et imaginaires des deux membres de l'équation (2.32) :

$$p_1'^2 - p_1''^2 = \beta'^2 - \frac{\omega^2}{c^2} - \beta''^2 \quad (2.33)$$

$$2p'_1 p''_1 = 2\beta' \beta'' > 0. \quad (2.34)$$

La deuxième égalité prouve que les composantes réelle et imaginaire du vecteur d'onde transverse p sont de même signe car β' et β'' sont tous les deux positifs. L'égalité des modules de l'équation (2.32) peut s'écrire :

$$p_1'^2 + p_1''^2 = \sqrt{(\beta'^2 - \beta''^2 - \frac{\omega^2}{c^2})^2 + 4\beta'^2 \beta''^2}. \quad (2.35)$$

L'addition des équations (2.32) et (2.35) fournit :

$$p'_1 = \sqrt{\frac{1}{2} \left(\beta'^2 - \frac{\omega^2}{c^2} - \beta''^2 + \sqrt{\left(\beta'^2 - \beta''^2 - \frac{\omega^2}{c^2} \right)^2 + 4\beta'^2 \beta''^2} \right)}. \quad (2.36)$$

L'onde sera évanescente dans la direction hors-plan dans le milieu 1 si $p'_1 > 0$ c'est-à-dire si :

$$\beta' > \sqrt{\beta''^2 + \frac{\omega^2}{c^2}} - \sqrt{\left(\beta'^2 - \beta''^2 - \frac{\omega^2}{c^2} \right)^2 + 4\beta'^2 \beta''^2}. \quad (2.37)$$

Le même raisonnement appliqué au milieu 2 donne la condition suivante :

$$\beta' > \sqrt{\beta''^2 + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon'_2} - \sqrt{\left(\beta'^2 - \beta''^2 - \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon'_2 \right)^2 + \left(\frac{\omega^2}{c^2} \epsilon''_2 - 2\beta' \beta'' \right)^2}. \quad (2.38)$$

Ces deux conditions semblent assez compliquées à première vue. Mais si les pertes sont négligées ($\epsilon''_2 = 0$), l'ensemble du membre de droite de l'inéquation (2.38) se réduit à β' , celle-ci n'a alors plus de sens et il faut revenir à l'étude présentée précédemment avec une constante diélectrique ϵ_2 réelle. L'inégalité de l'inéquation est stricte car en cas d'égalité $p'_1 = 0$, ce qui correspond à une onde radiative. La comparaison des conditions (2.37) et (2.38) avec celles d'ondes propagatives/non propagatives pour un matériau diélectrique sans pertes permet de mieux comprendre leur intérêt.

$$\beta' > \frac{\omega}{c} \text{ cône de lumière dans l'air} \quad (2.39)$$

pour la condition (2.37) et

$$\beta' > \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon'_2} \text{ cône de lumière dans le milieu 2} \quad (2.40)$$

pour la condition (2.38). Nous avons comparé ces conditions dans le cas d'un matériau diélectrique avec des pertes faibles (SiC) et avec de fortes pertes (verre).

L'exemple du SiC permet de valider les conditions d'existence du PPS pour un matériau avec pertes, car celles-ci doivent se confondre majoritairement avec les conditions obtenues pour un matériau sans pertes. En effet la figure 2.15 montre que la partie imaginaire de la permittivité diélectrique du carbure de silicium est négligeable devant sa partie réelle sauf pour une zone de fréquences très minoritaire.

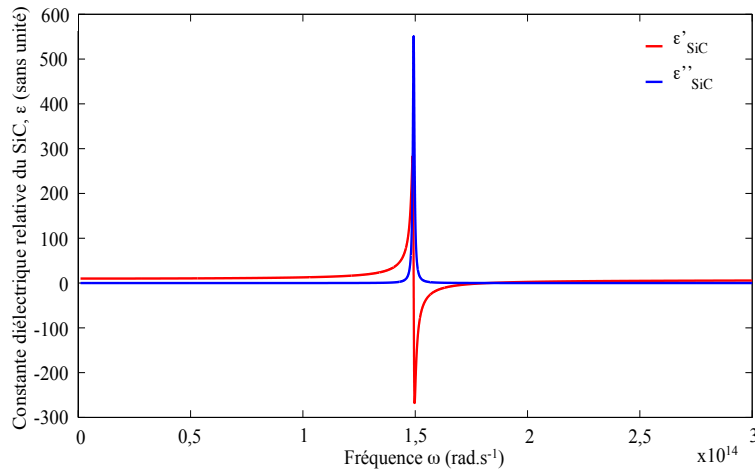


Figure 2.15 – *Parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique relative de SiC $\epsilon = \epsilon' - i\epsilon''$. Cette constante a été calculée à partir de la formule théorique $\epsilon = \epsilon_\infty \left(1 + \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2 + i\Gamma\omega}\right)$ avec les données expérimentales ajustées de Spitzer, Kleinman et Walsh [108] $\epsilon_\infty = 6,7$, $\omega_T = 14,93 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$, $\omega_L = 18,24 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ et $\Gamma = 8,96 \cdot 10^{11} \text{ rad.s}^{-1}$.*

La relation de dispersion du PPS pour une interface plane entre du SiC et de l'air est présentée en figures 2.16 et 2.17 où elle est confrontée aux conditions (2.39) et (2.40) puis aux conditions (2.37) et (2.38). La courbe de dispersion du PPS doit être située à droite des deux courbes noire et rouge (cônes de lumière dans l'air et dans le SiC) pour décrire une onde de surface. Dans le cas de la figure 2.16 la courbe de dispersion coupe nettement les deux cônes de lumière, permettant de repérer facilement la zone de fréquence où apparaît l'onde de surface. Par contre la figure 2.17 montre le même résultat à quelques détails près : l'onde de surface devient propagative dans le milieu 1 ou 2 lorsque la relation de dispersion se confond à la courbe de la condition 1 (correspondant à (2.37)) ou à la courbe de la condition 2 (correspondant à (2.38)). Ceci est conforté par le tracé de p'_1 et de p'_2 en figure 2.18 qui possèdent des valeurs positives importantes (supérieures à 10^5 m^{-1} correspondant à un confinement transverse inférieur à une dizaine de microns) entre $15 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ et $18 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$.

rad.s^{-1} . Les deux composantes réelles du vecteur d'onde transverse ne sont pas rigoureusement nulles pour le reste des fréquences, mais leurs valeurs faibles sont compatibles avec un caractère d'onde propagative plutôt qu'avec une onde confinée en surface. Un cas particulier apparaît lorsque l'onde ne respecte plus qu'une seule condition d'onde évanescente sur les deux nécessaires pour être une onde de surface. Ce cas correspond à des ondes guidées observables aux alentours de $15.10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ pour le SiC. Pour conclure sur le SiC, les conditions d'existence du PPS (2.37) et (2.38) ne sont pas en désaccord avec les conditions (2.39) et (2.40). Ceci était prévisible car les pertes sont négligeables pour ce matériau, il n'en est pas de même s'il s'agit du verre.

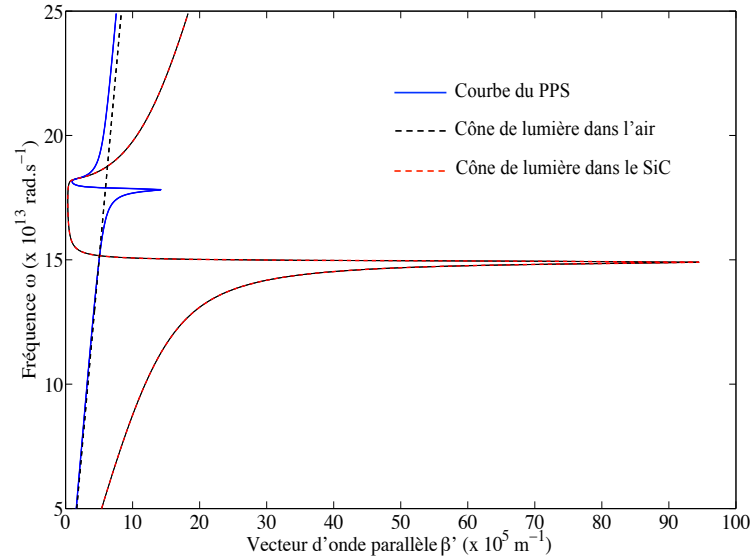


Figure 2.16 — Courbe de dispersion du PPS se propageant sur une surface plane de SiC. Les cônes de lumière de l'air et du SiC correspondent respectivement aux conditions (2.39) et (2.40).

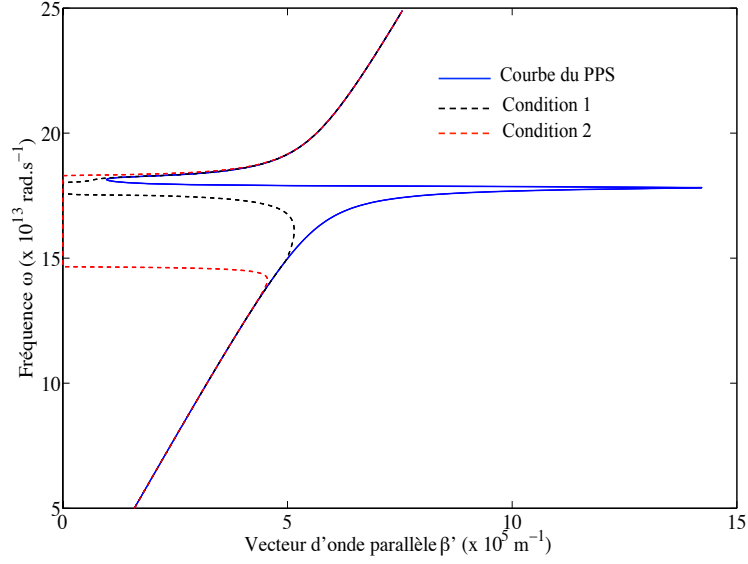


Figure 2.17 – Courbe de dispersion du PPS se propageant sur une surface plane de SiC. Les conditions 1 et 2 correspondent respectivement aux conditions (2.37) et (2.38). Lorsque la courbe du PPS se confond avec une des deux autres, l'onde résultante perd son caractère évanescent.

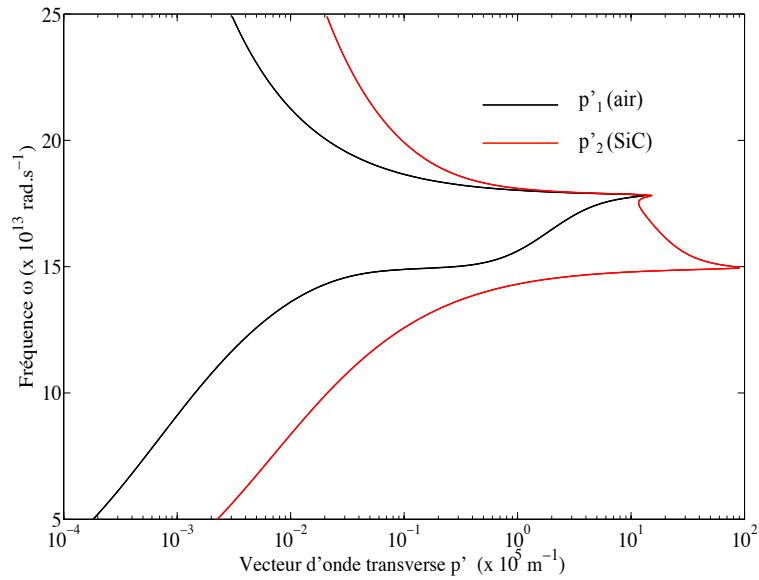


Figure 2.18 – Évolution de la composante réelle du vecteur d'onde transverse p' dans l'air (p_1) et dans le SiC (p_2).

Les pertes diélectriques du verre ne peuvent pas être négligées pour étudier la

propagation du PPS : en effet comme l'indique la figure 2.19, ϵ'' peut atteindre des valeurs plus grandes que celles de la partie réelle ϵ' sur de larges bandes de fréquence, ce qui n'était pas le cas du SiC.

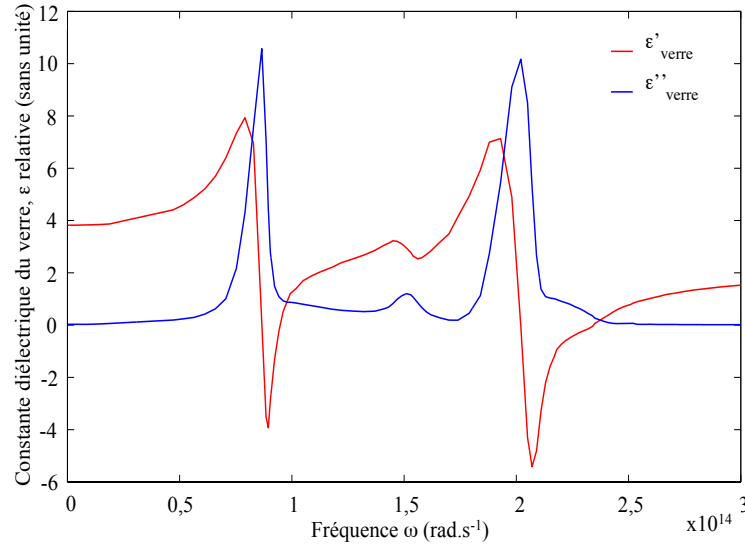


Figure 2.19 — Tracé des parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique du verre (SiO_2). Ces courbes ont pu être tracées grâce aux données expérimentales recueillies par Palik [91].

Les relations de dispersion du verre avec les conditions de constante diélectrique réelle et complexe sont présentées en figure 2.20 et 2.21. Le verre peut supporter des PPS pour deux zones de fréquence : l'une autour de $9 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ et l'autre autour de $21 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$. Par contre la largeur de la zone de fréquence où le PPS existe n'est pas la même suivant que ϵ est considéré comme réel ou complexe. Le PPS n'existe que pour des fréquences où la courbe de dispersion est située à droite des courbes correspondant aux deux conditions d'existence (en pointillés rouges et noirs sur les figures). En négligeant les pertes diélectriques du verre, le PPS existe entre $8,9 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ et $9,3 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ d'une part et entre $20,7 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ et $22 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$. En prenant en compte ces pertes, la zone d'existence du PPS s'élargit de $8,9 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ à $9,5 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ pour le premier pic et entre $19,8 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ et $23,5 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ pour le deuxième pic. Cet élargissement spectral du PPS est de plus en plus marqué lorsque la taille des systèmes diminue comme dans le cas des couches minces [121].

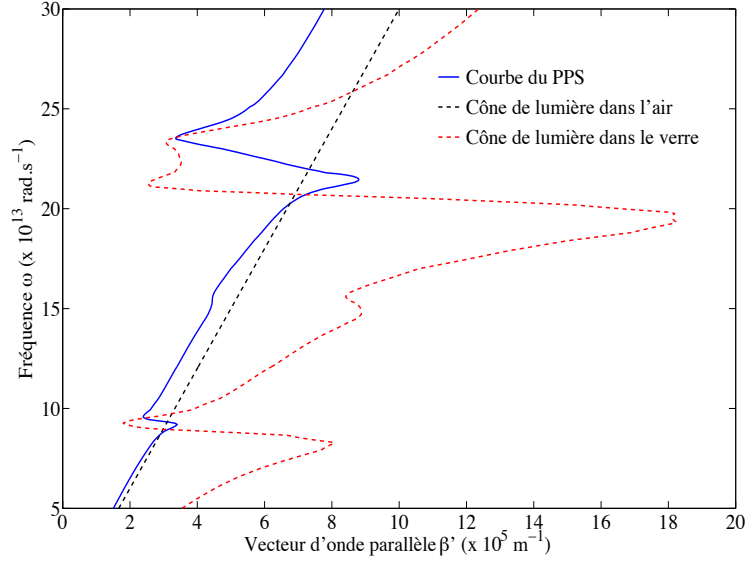


Figure 2.20 – Courbe de dispersion du PPS se propageant sur une surface plane en verre. Les cônes de lumière de l'air et du verre correspondent respectivement aux conditions (2.39) et (2.40).

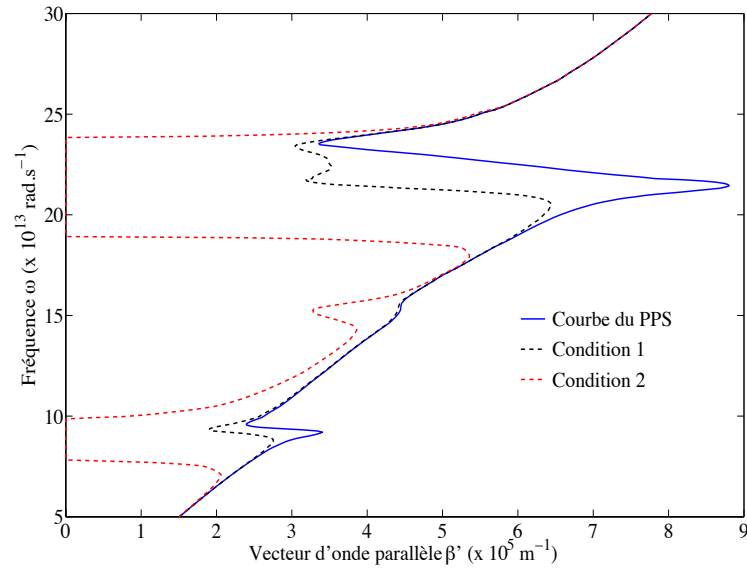


Figure 2.21 – Courbe de dispersion du PPS se propageant sur une surface plane en verre. Les conditions 1 et 2 correspondent respectivement aux conditions (2.37) et (2.38). Lorsque la courbe du PPS se confond avec une des deux autres, l'onde résultante perd son caractère évanescent.

La zone d'existence du PPS, en prenant en compte les pertes diélectriques, a été définie arbitrairement en posant $p' > 10^5 \text{ m}^{-1}$ dans les milieux 1 et 2 pour le SiC et le verre. La courbe de la composante réelle du vecteur d'onde transverse p' est toujours positive quel que soit le milieu (voir les figures 2.18 et 2.22). Ceci signifie que les conditions d'existence (2.37) et (2.38) sont en fait quasiment toujours vérifiées pour un matériau avec pertes, mais l'atténuation transverse est plus ou moins importante suivant la fréquence considérée. Ces ondes de surface sont appelées modes de *Zenneck-Sommerfeld* [15].

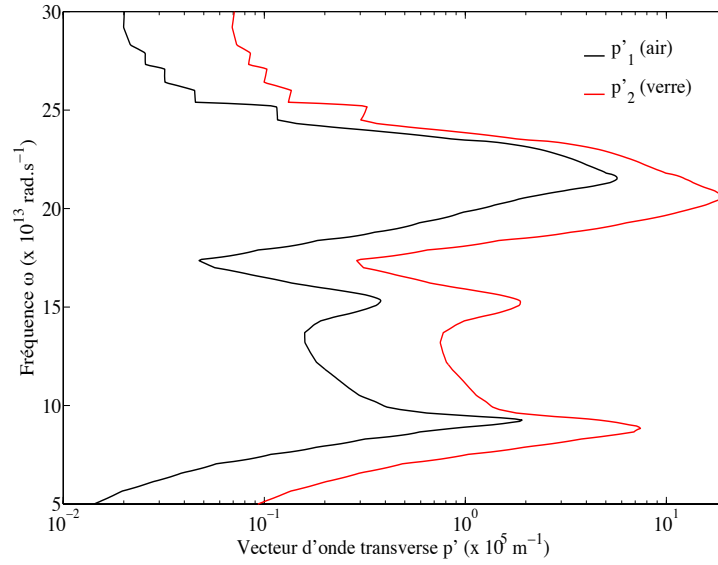


Figure 2.22 – Évolution de la composante réelle du vecteur d'onde transverse p' dans l'air (p_1) et dans le verre (p_2).

La suite de l'étude théorique va donc surtout consister à calculer la longueur de propagation longitudinale du PPS se propageant à l'interface entre du verre et un autre milieu non dispersif. En effet le caractère évanescent sera toujours plus ou moins marqué pour une très large gamme de fréquences (ici entre 5 et $30 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$), cependant l'oscillation collective des dipôles sera suratténuée (longueur de propagation ne dépassant guère la centaine de microns) rendant l'intérêt du PPS assez faible pour des applications thermiques fondées sur une interface plane. Nous examinons de nouvelles structures pour augmenter cette longueur de propagation dans la suite de la partie théorique.

Chapitre 3

Propagation du phonon-polariton de surface en géométrie plane et cylindrique

Ce chapitre a pour objectif de montrer théoriquement que le PPS peut augmenter les performances thermiques de nanomatériaux. Il s'agit d'abord d'explicitier ce lien en montrant comment la longueur de propagation du PPS calculée à partir de sa relation de dispersion affecte la conductivité thermique du matériau considéré. Ensuite les propriétés du PPS seront examinées pour deux géométries simples : la géométrie plane avec les couches minces et la cylindrique avec les nanotubes. Le cas du nanofil sera traité à part car même s'il ne présente qu'un intérêt limité d'augmentation de la contribution du PPS à la conductivité thermique contrairement aux deux premières géométries, il offre une possibilité remarquable de quantification du transfert de chaleur à température ambiante. Les résultats théoriques sont tirés des articles [85] pour les résultats de la couche mince et de [87] pour la quantification de la conductance thermique.

3.1 Modèle utilisé pour la conductivité thermique

Nous détaillons ici le modèle théorique utilisé pour calculer la conductivité thermique due aux PPS pour une couche mince et un tube. Ceci permet de mieux comprendre en quoi l'augmentation de la longueur de propagation du PPS améliore cette conductivité thermique. On considère que la conduction de chaleur a lieu suivant la direction $\mathbf{x}$ et que la couche mince représentée en figure 3.1 est suffisamment fine pour négliger le gradient de température selon la direction $\mathbf{z}$. L'équation de transport de Boltzmann dans l'approximation du temps de relaxation permet d'établir la contribution du PPS à la conductivité

thermique globale dans la direction $\mathbf{x}$ [24] :

$$\kappa = \frac{1}{4\pi d} \int_0^\infty \hbar\omega\Lambda\beta' \frac{\partial f_0}{\partial T} d\omega, \quad (3.1)$$

où f_0 est la fonction de distribution de Bose-Einstein, T la température de la couche mince, β' la partie réelle du vecteur d'onde β le long de l'axe $\mathbf{x}$, Λ la longueur de propagation (libre parcours moyen) du PPS et $\hbar$ la constante de Planck divisée par 2π .

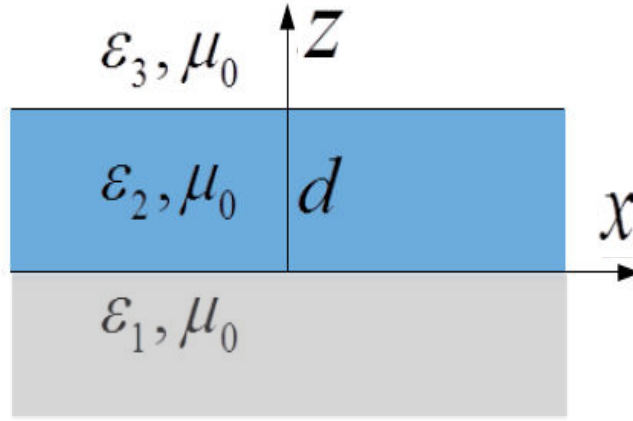


Figure 3.1 – Section de la couche mince étudiée de permittivité diélectrique ϵ_2 entourée de milieux de permittivités diélectriques ϵ_1 et ϵ_3 .

Le même raisonnement appliqué au tube représenté en figure 3.2 pour la conductivité thermique due aux PPS selon la direction $\mathbf{x}$ fournit l'expression :

$$\kappa = \frac{1}{6\pi^2} \int_0^\infty \hbar\omega\Lambda\beta'^2 \frac{\partial f_0}{\partial T} d\omega, \quad (3.2)$$

indiquant une dépendance au carré de la partie réelle du vecteur d'onde β . Ce n'est pas le cas de l'équation (3.1) car on suppose qu'aucune propagation n'a lieu selon la direction transverse $\mathbf{y}$ dans la couche mince, ce qui autorise à traiter ce cas comme un problème bidimensionnel. Le calcul de la dérivée de la fonction de distribution donne :

$$\frac{\partial f_0}{\partial T} = \frac{\omega}{\omega_c T} \frac{e^{\frac{\omega}{\omega_c}}}{(e^{\frac{\omega}{\omega_c}} - 1)^2}, \quad (3.3)$$

avec $\omega_c = k_B T / \hbar$. La conductivité thermique dépend donc fortement du rapport de fréquences ω/ω_c de sorte que l'équation (3.3) se réduit à $\partial f_0 / \partial T \approx \omega_c / \omega T$

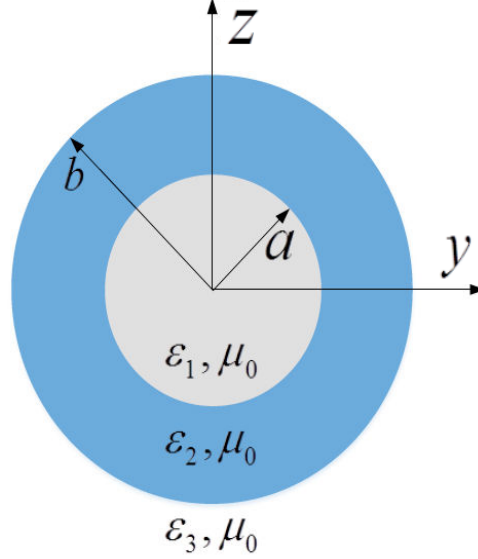


Figure 3.2 – Section circulaire du tube étudié de permittivité diélectrique ϵ_2 entourée de milieux de permittivités diélectriques ϵ_1 et ϵ_3 .

dans la limite classique ($\omega \ll \omega_c$). Les intégrandes des équations (3.1) et (3.2) ne dépendent donc que de la longueur de propagation et de la partie réelle de β tandis que la conductivité thermique devient indépendante de la température. À température ambiante ($T = 300$ K) la fréquence de coupure est égale à $\omega_c = 3,94.10^{13}$ rad.s⁻¹ si bien que l'on sort de l'approximation précédente : dans notre étude la conductivité thermique due aux PPS dépendra donc de la température comme c'est habituellement le cas de la conductivité thermique phononique [25]. Avant de pouvoir continuer plus loin notre analyse de la conductivité thermique, nous avons besoin de connaître les propriétés dispersives du PPS.

3.2 Relations de dispersion

Dans cette partie la relation de dispersion du PPS se propageant à la surface d'une couche mince en verre ou dans un tube en verre est détaillée. La dépendance fréquentielle du vecteur d'onde et de la longueur de propagation est présentée pour chacune de ces structures. Pour chaque système nous distinguerons deux cas suivant la symétrie de la constante diélectrique ϵ des milieux entourant celui optiquement actif : d'une part le cas symétrique où ces deux milieux ont le même ϵ et d'autre part le cas antisymétrique où celui-ci est différent. Ces résultats sont tirés de l'article [85] auquel le lecteur peut se référer si besoin.

3.2.1 Couche mince

La structure de la couche mince étudiée est présentée en figure 3.1. Tous les milieux étudiés sont non magnétiques (c'est-à-dire que la perméabilité magnétique relative $\mu = 1$). Les milieux 1 et 3 sont non dispersifs à la différence du milieu optiquement actif avec une constante diélectrique $\epsilon_2(\omega)$ dépendant de la fréquence.

La résolution des équations de Maxwell associées aux conditions aux limites adéquates pour une polarisation transverse magnétique, spécifique aux polaritons de surface [24], conduit à la relation de dispersion suivante :

$$\tanh(p_2 d) = -\frac{p_2 \epsilon_2 (p_1 \epsilon_3 + p_3 \epsilon_1)}{p_2^2 \epsilon_1 \epsilon_3 + p_1 p_3 \epsilon_2^2} \quad (3.4)$$

en utilisant les mêmes notations qu'au chapitre précédent. Les constantes diélectriques ϵ_1 et ϵ_3 sont des constantes réelles et positives tandis que ϵ_2 pour la couche mince est complexe et dépend de la fréquence. Nous allons surtout nous intéresser à l'effet de l'épaisseur de la couche mince sur la propagation du PPS.

3.2.1.1 Cas symétrique : $\epsilon_1 = \epsilon_3$

Dans ce cas l'équation (3.4) fournit deux branches dans le graphique de dispersion : une branche où le champ magnétique du PPS sera pair et l'autre où il sera impair [122]. La branche paire fournit le régime de propagation du PPS le plus favorable avec des longueurs de propagation les plus grandes. Nous allons donc nous restreindre à cette branche. Pour celle-ci l'équation (3.4) devient :

$$\tanh\left(\frac{p_2 d}{2}\right) = -\frac{p_1 \epsilon_2}{p_2 \epsilon_1} \quad (3.5)$$

Même si cette équation peut être résolue numériquement en fonction du vecteur d'onde β , il est possible d'étudier analytiquement deux cas limites. Pour une large épaisseur ($p_2 d \gg 2$), l'équation (3.5) est réduite à l'équation linéaire $p_2 \epsilon_1 + p_1 \epsilon_2 = 0$ qui est la relation de dispersion pour une interface plane entre deux milieux semi-infinis comme on pouvait s'y attendre [122 et 121].

D'autre part dans la limite de couche très mince ($p_2 d \ll 2$), avec une approximation du premier ordre l'équation (3.4) se réduit en la relation parabolique suivante :

$$\frac{p_2^2}{\epsilon_2} + \frac{2 p_1}{d \epsilon_1} = 0 \quad (3.6)$$

Sachant que $p_2^2 = p_1^2 - (\epsilon_2 - \epsilon_1)\omega^2/c^2$ et que la partie réelle de p_1 doit être positive pour garantir que les champs électriques et magnétiques ont bien le comportement propre à une onde de surface [122], la solution de l'équation

(3.6) en p_1 , avec une approximation au premier ordre sur l'épaisseur d , est :

$$p_1 = \frac{d}{2} \left(1 - \frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} \right) \epsilon_1 \frac{\omega^2}{c^2} \quad (3.7)$$

Cette solution indique que l'effet de la différence des permittivités diélectriques $(\epsilon_2 - \epsilon_1)$ est modulé par l'épaisseur du film. Plus l'épaisseur sera grande plus l'effet de la différence des permittivités sera faible, et *vice versa*. Si l'épaisseur du film est faible ($p_2 d \ll 2$), l'effet de la couche mince sur la propagation du champ électromagnétique devra être faible en comparaison avec le milieu extérieur. Ainsi les deux composantes réelle β' et imaginaire β'' du vecteur d'onde longitudinal $\beta = \beta' - i\beta''$ devront tendre respectivement vers $\sqrt{\epsilon_1}\omega/c$ et zéro (car $p_1 \rightarrow 0$). Dans ces conditions en reprenant l'équation $p_1^2 = \beta^2 - \epsilon_1\omega^2/c^2$, on obtient :

$$\beta' = \sqrt{\epsilon_1} \frac{\omega}{c} \left(1 + \frac{p_1'^2 - p_1''^2}{2\epsilon_1 \frac{\omega^2}{c^2}} \right) \quad (3.8)$$

$$\beta'' = \frac{p_1' p_1''}{\sqrt{\epsilon_1} \frac{\omega}{c}} \quad (3.9)$$

avec p_1' et p_1'' les composantes réelle et imaginaire du vecteur d'onde transverse p_1 telles que $p_1 = p_1' - ip_1''$. Pour une couche mince de permittivité diélectrique complexe $\epsilon_2 = \epsilon_2' - i\epsilon_2''$, l'équation (3.7) permet d'expliciter les deux équations précédentes en :

$$\beta' = \sqrt{\epsilon_1} \frac{\omega}{c} \left[1 + \frac{\epsilon_1 (\frac{\omega d}{c})^2}{8} \left(1 - \frac{2\epsilon_1 \epsilon_2'}{|\epsilon_2|^2} + \frac{\epsilon_1^2 (\epsilon_2'^2 - \epsilon_2''^2)}{|\epsilon_2|^4} \right) \right] \quad (3.10)$$

$$\beta'' = \sqrt{\epsilon_1} \frac{\omega}{c} \frac{(\frac{\omega d}{c})^2}{4} \frac{\epsilon_1^2 \epsilon_2''}{|\epsilon_2|^2} \left(1 - \frac{\epsilon_1 \epsilon_2'}{|\epsilon_2|^2} \right) \quad (3.11)$$

avec $|\epsilon_2| = \sqrt{\epsilon_2'^2 + \epsilon_2''^2}$. On peut remarquer que β' et β'' dépendent fortement du carré du terme $\omega d/c$, qui est même le terme prédominant pour β'' . Cela montre que la longueur de propagation définie par [24] :

$$\Lambda = \frac{1}{2\beta''} \quad (3.12)$$

augmente quand l'épaisseur du film d diminue. Cette définition a été choisie pour correspondre physiquement à la longueur d'atténuation du vecteur de Poynting du PPS (voir la partie 3.3).

Comme la conductivité thermique du PPS augmente avec la longueur de propagation, le régime de couche très mince ($|p_2 d| \ll 2$) est le plus intéressant

pour améliorer le transfert de chaleur par PPS. De plus l'équation (3.11) fournit une condition d'existence du PPS sous la forme $\epsilon_2'^2 + \epsilon_2''^2 - \epsilon_1 \epsilon_2' > 0$. Cette condition coïncide avec les résultats de Yang *et al.* [121] selon lesquels dans le plan (ϵ', ϵ'') , le PPS peut se propager partout, excepté à l'intérieur du demi-cercle centré à $(\epsilon_1/2, 0)$ et de rayon $\epsilon_1/2$. Même si cette zone peut légèrement changer lorsque l'on utilise des développements d'ordre plus élevé pour résoudre l'équation (3.5). Ce résultat indique que la longueur de propagation et donc la conductivité thermique du PPS peut être fortement améliorée si la permittivité ϵ_1 est choisie de sorte que $\epsilon_1 \rightarrow \epsilon_2' + \epsilon_2''/\epsilon_2'$ pour des fréquences où ϵ_2' et ϵ_2'' varient peu. Dans le cas d'une couche mince de verre suspendue dans l'air, nous avons vérifié par des calculs numériques que les équations (3.10) et (3.11) procurent une description exacte du vecteur d'onde longitudinal β pour une épaisseur d inférieure à 300 nm qui sera la limite de couche très mince pour cet exemple. Reprenons l'étude des composantes réelle et complexe de la constante diélectrique du verre en fonction de la fréquence représentée en figure 2.19. Les pics de résonance de ϵ_2'' à environ $8,7 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ et à $20,2 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ indiquent que le SiO_2 absorbe une grande partie de l'énergie électromagnétique à ces fréquences. Par contre le minimum de ϵ_2'' à $17,4 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ montre qu'à cette fréquence les champs électromagnétiques peuvent se propager sur d'assez grandes distances à l'intérieur de la silice. On peut donc s'attendre à ce que la contribution du PPS à la conductivité thermique ait lieu pour des fréquences aux alentours du minimum d'absorption du verre (minimum de ϵ_2'') et des fréquences de résonance de sa permittivité diélectrique ϵ_2 .

Les figures 3.3 et 3.4 montrent la relation de dispersion et la longueur de propagation Λ en fonction de la fréquence pour trois épaisseurs différentes d'une couche mince de verre suspendue dans l'air ($\epsilon_1 = \epsilon_3 = 1$). Pour comparaison, le cas d'une interface de deux milieux semi-infinis air/verre est aussi représenté. Le cône de lumière est représenté aussi comme pour tous les graphiques de dispersion présents dans le reste de ce manuscrit. En effet il permet de savoir si le PPS a un comportement plutôt photonique ou phononique même s'il ne permet plus de distinguer une onde propagative d'une onde évanescence à cause des pertes diélectriques. À ce propos on peut remarquer que pour une épaisseur d de 0,1 μm , la courbe de β' est presque surposée au cône de lumière pour toutes les fréquences indiquant un comportement photonique du PPS. Les simulations montrent que ce comportement persiste pour des épaisseurs plus faibles dans la limite des hypothèses de non localité de la constante diélectrique. Quand l'épaisseur de la couche mince augmente, le vecteur d'onde du PPS s'écarte du cône de lumière et la courbe de dispersion se confond pour $d = 3 \mu\text{m}$ à celle d'une interface unique ($d \rightarrow \infty$) [93, 23, 122 et 121]. Cela prouve que l'on peut faire l'approximation d'un milieu semi-infini lorsque l'épaisseur de la couche mince dépasse 3 μm pour l'étude de la propagation du PPS à sa surface. Ce comportement est aussi vérifié pour sa longueur de propagation en figure 3.4. De plus il est important de remarquer que cette longueur de propagation augmente quand l'épaisseur du film diminue pour atteindre $\Lambda \approx 1 \text{ cm}$ quand

$d = 0,1 \mu\text{m}$. Une augmentation de la conductivité thermique est donc attendue pour des couches de plus en plus minces. Le maximum de la longueur de propagation est atteint à $17,4 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ où la composante imaginaire de la permittivité diélectrique de SiO_2 est la plus faible (voir figure 2.19). En effet la faible absorption de l'énergie dans la couche mince à cette fréquence réduit l'atténuation du PPS. Les autres *maxima* et *minima* de la longueur de propagation ne sont pas rigoureusement placés aux fréquences de résonance des parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique du verre, mais elles ont lieu tout de même dans une région proche de celles-ci. Cela est compréhensible quand on sait que la longueur de propagation dépend fortement des parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique comme le montre l'équation (3.11). En outre, comme dans le cas de l'interface plane, les parties réelles des vecteurs d'onde transverses p_j avec $j = 1, 2, 3$ sont positives, quelle que soit l'épaisseur de la couche dans toute la large gamme de fréquences représentées en figures 3.3 et 3.4. Ceci signifie que les longueurs de propagation calculées ont bien un sens physique et que les PPS existent bien dans toute la gamme de fréquences étudiée. Ainsi la contribution des PPS à la conductivité thermique de la couche mince est supposée être très grande non seulement à cause des grandes longueurs de propagation en jeu mais aussi grâce au large spectre de fréquences où le PPS peut se propager.

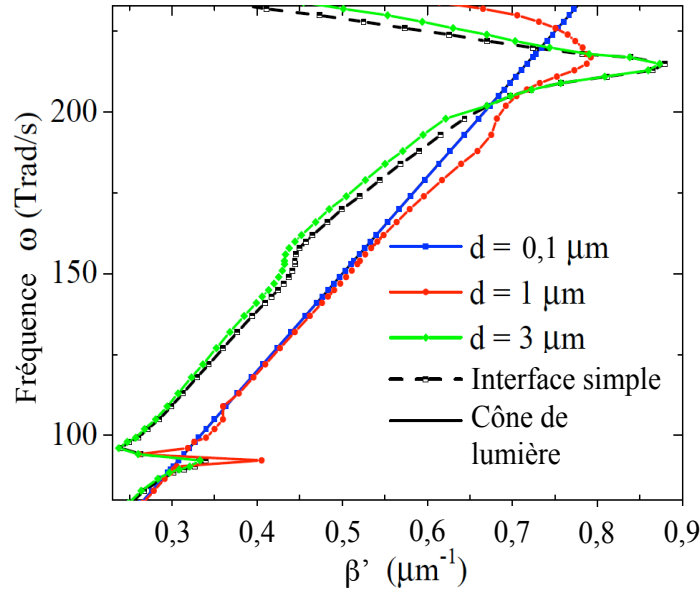


Figure 3.3 – Relation de dispersion du PPS pour une couche mince de verre suspendue dans l'air ($\epsilon_1 = \epsilon_3 = 1$) ayant trois épaisseurs $d = 0,1 - 1$ et $3 \mu\text{m}$ et dans le cas d'une interface simple.

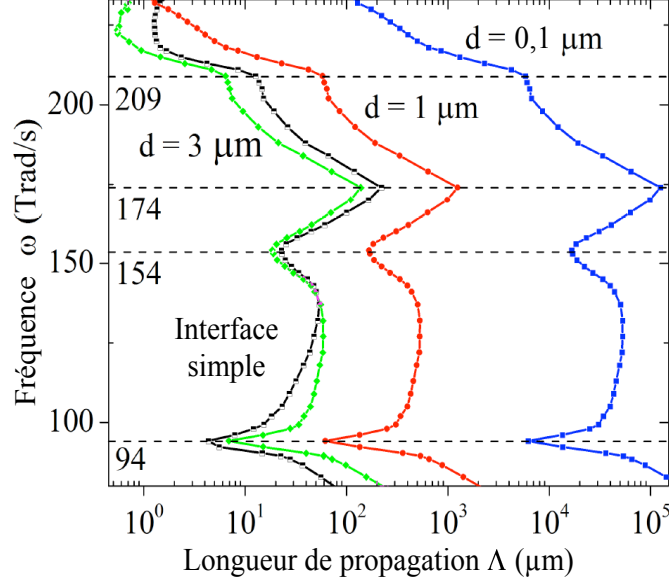


Figure 3.4 – Longueur de propagation du PPS pour une couche mince de verre suspendue dans l'air ($\epsilon_1 = \epsilon_3 = 1$) ayant trois épaisseurs $d = 0,1 - 1$ et $3 \mu\text{m}$ et dans le cas d'une interface simple.

3.2.1.2 Cas asymétrique : $\epsilon_1 \neq \epsilon_3$

Nous nous intéressons maintenant au cas où les deux milieux extérieurs ont des permittivités différentes. Sans perdre en généralité, on suppose que $\epsilon_1 > \epsilon_3$, ce qui implique que $|p_1| < |p_3|$ (cf. équation (2.20)). Comme dans le cas de la couche mince symétrique, les solutions numériques de l'équation (3.4) indiquent que les longueurs de propagation du PPS les plus grandes sont obtenues dans la limite d'une couche très mince ($|p_2 d| \ll 2$). Nous allons donc continuer notre étude en suivant principalement cette approximation. Grâce à une approximation au premier ordre du membre de droite, l'équation (3.4) s'écrit :

$$p_1^2 + \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1 d} p_1 + (\epsilon_1 - \epsilon_2) \frac{\omega^2}{c^2} = -\frac{\epsilon_2}{\epsilon_3} \left(\frac{1}{d} + \frac{\epsilon_2 p_1}{\epsilon_1} \right) p_3. \quad (3.13)$$

Il est possible de résoudre cette équation analytiquement en la mettant au carré et en utilisant la relation $p_3^2 = p_1^2 - (\epsilon_3 - \epsilon_1) \omega^2 / c^2$ pour obtenir une équation polynômiale d'ordre 4 en p_1 . Cependant ces calculs ne sont pas nécessaires dès lors que l'on se place dans l'approximation de couche très mince ($|p_2 d| \ll 2$) et que l'on suppose $\epsilon_1 > \epsilon_3$, on a alors $\beta \rightarrow \sqrt{\epsilon_1} \omega / c$ et donc $p_1 \rightarrow 0$. Les termes d'ordre élevé du polynôme peuvent être négligés pour obtenir une approximation linéaire en p_1 :

$$p_1 = \frac{\epsilon_1}{2\epsilon_2 d} \frac{(\epsilon_2 - \epsilon_1)^2 (\epsilon_3 \frac{\omega d}{c})^2 - \Delta \epsilon_2^2}{(\epsilon_2 - \epsilon_1) \epsilon_3^2 + \Delta \epsilon_2^2} \quad (3.14)$$

avec $\Delta = \epsilon_1 - \epsilon_3$. Yang *et al.* ont suggéré qu'une légère asymétrie entre les deux milieux extérieurs à la couche mince favoriserait des modes de surface de longue portée [121]. Dans ce cas $\Delta \ll \epsilon_1, \epsilon_3$ et l'équation (3.14) devient :

$$p_1 = \frac{d}{2} \left(1 - \frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} \right) \epsilon_1 \frac{\omega^2}{c^2} + \frac{\Delta}{2d} \frac{\epsilon_1}{\epsilon_3^2} \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1 - \epsilon_2}. \quad (3.15)$$

Le premier terme de l'équation (3.15) est le même que dans l'équation (3.7) obtenue dans le cas symétrique ($\epsilon_1 = \epsilon_3$) tandis que le second terme est spécifique de l'asymétrie ($\epsilon_1 \neq \epsilon_3$) des milieux environnants. La combinaison des équations (3.8) et (3.9) avec l'équation (3.15) conduit aux expressions des composantes réelle et imaginaire du vecteur d'onde longitudinal :

$$\beta' = \sqrt{\epsilon_1} \frac{\omega}{c} \left[1 + \frac{\epsilon_1 (\frac{\omega d}{c})^2}{8} \left[\left(1 - \frac{\epsilon_1 \epsilon_2'}{|\epsilon_2|^2} \right)^2 \chi_-^2 + \left(\frac{\epsilon_1 \epsilon_2''}{|\epsilon_2|^2} \right)^2 \chi_+^2 \right] \right] \quad (3.16)$$

$$\beta'' = \beta_S'' \left[1 - \left(\frac{d_c}{d} \right)^4 \right] \quad (3.17)$$

où $\beta_S'' = \beta''|_{\epsilon_3=\epsilon_1}$ donné par l'équation (3.11) et :

$$\chi_{\pm} = 1 \pm \left(\frac{d_c}{d} \right)^2 \quad (3.18)$$

$$d_c = \frac{\sqrt{\Delta}}{\epsilon_3 \frac{\omega}{c}} \frac{|\epsilon_2|}{|\epsilon_2 - \epsilon_1|}. \quad (3.19)$$

Les équations (3.16) et (3.17) amènent plusieurs remarques :

- Les valeurs de β' et de β'' dépendent fortement du rapport d_c/d de sorte que pour $\Delta = 0$ ($d_c = 0$), les équations (3.16) et (3.17) se réduisent respectivement en (3.10) et (3.11) obtenues pour un système symétrique.
- L'épaisseur du film doit être plus grande que l'épaisseur critique ($d > d_c$) pour garantir un caractère évanescent aux champs électrique et magnétique du PPS. Selon l'équation (3.19) le maximum de l'épaisseur critique est atteint pour $\epsilon_2'' = 0$, et donc la gamme de fréquences pour laquelle la propagation du PPS est possible à travers une couche mince d'une épaisseur donnée est donnée par $d_c(\omega) \leq d_c(\omega_0) < d$ où ω_0 est la fréquence où la partie imaginaire de la permittivité s'annule ($\epsilon_2'' = 0$).
- En choisissant l'épaisseur du film proche de l'épaisseur critique d'une absorption très faible ($d \rightarrow d_c(\omega_0)$), β'' tend vers zéro donc la longueur de propagation est fortement amplifiée autour de la fréquence ω_0 (cf équation (3.12)). Ceci prouve que la différence des permittivités des milieux environnants peut être utilisée pour amplifier la conductivité thermique due au PPS d'une couche mince. Cette caractéristique

n'est pas en désaccord avec le principe de conservation de l'énergie qui stipule qu'une longueur de propagation infinie ne serait possible que si la couche mince n'absorbait pas l'énergie du champ électromagnétique. Même si les matériaux réels absorbent toujours un peu d'énergie, le PPS peut se propager sur de grandes distances à des fréquences où l'absorption est minimale. Dans le cas du SiO_2 cette condition est satisfaite pour $\omega_0 = 17,4 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ comme le montrent les figures 2.19 et 3.4.

- Pour $d = d_c(\omega_0)$ les équations (3.16) et (3.17) se réduisent à $\beta = \sqrt{\epsilon_1}\omega/c$ ($p_1 = 0$) qui est la relation de dispersion du phonon-polariton de volume du substrat ayant une constante diélectrique réelle et positive ϵ_1 . Cela signifie qu'en négligeant l'absorption d'énergie, la propagation du PPS disparaît à l'interface avec le milieu 1 devenant une onde propagative, tandis qu'à l'interface avec le milieu 3 de permittivité ϵ_3 plus faible, ces ondes de surface se propagent toujours avec un vecteur d'onde transverse $p_3 = \frac{\omega}{c}\sqrt{\epsilon_1 - \epsilon_3} > 0$. On peut obtenir ces résultats directement à partir de la relation de dispersion d'une couche mince (3.4) en supposant $p_1 = 0$. Cette méthode assure que la seule solution ayant un sens physique correspond à $d = d_c(\omega_0)$ avec d_c et ω_0 définis respectivement par l'équation (3.19) et $\epsilon_2''(\omega_0) = 0$. Un résultat analogue a été obtenu par Wendier et Haupt qui ont étudié la propagation de plasmon-polaritons de surface dans des films métalliques [118]. Ils ont trouvé qu'au-delà d'une épaisseur de seuil, il y avait un mode de surface qui se transformait en une onde propagative pour des épaisseurs plus faibles.

Les figures 3.5 et 3.6 représentent la relation de dispersion et la longueur de propagation en fonction de la fréquence pour trois épaisseurs différentes d'une couche mince de SiO_2 déposée sur du KBr ($\epsilon_1 = 1,24$) en contact avec de l'air ($\epsilon_3 = 1$). Pour ce système la contrainte fournie par l'équation (3.19), $d_c(\omega) < d_c(\omega_0) \approx 104 \text{ nm}$ pour $\omega_0 = 17,4 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$, est satisfaite pour des fréquences supérieures à $\omega > 18,8 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$. La propagation de PPS est donc possible pour des épaisseurs de film $d > 104 \text{ nm}$. La figure 3.5 montre que la partie réelle du vecteur d'onde longitudinal β augmente avec la fréquence et l'épaisseur du film. Pour des fréquences faibles la courbe de dispersion du PPS suit très étroitement le cône de lumière (comportement photonique). Par contre pour des fréquences plus importantes la courbe s'aplatit, signifiant que le PPS adopte un comportement phononique.

Concernant les longueurs de propagation, la figure 3.6 montre que celles-ci sont plus grandes pour des films plus minces, ce qui est en accord avec le comportement observé dans le cas symétrique en figure 3.4. De plus on peut aussi remarquer que lorsque la différence entre l'épaisseur du film et l'épaisseur critique est faible ($d - d_c = 1 \text{ nm}$), la longueur de propagation peut atteindre 1 m. Ce résultat obtenu pour des PPS est analogue à celui découvert pour des plasmons de surface dans des métaux [118 et 38]. Les longueurs de propagation très grandes calculées ici se situent dans un intervalle de fréquence très étroit autour de $\omega = 18,8 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ proche de la fréquence d'absorption minimale. Selon

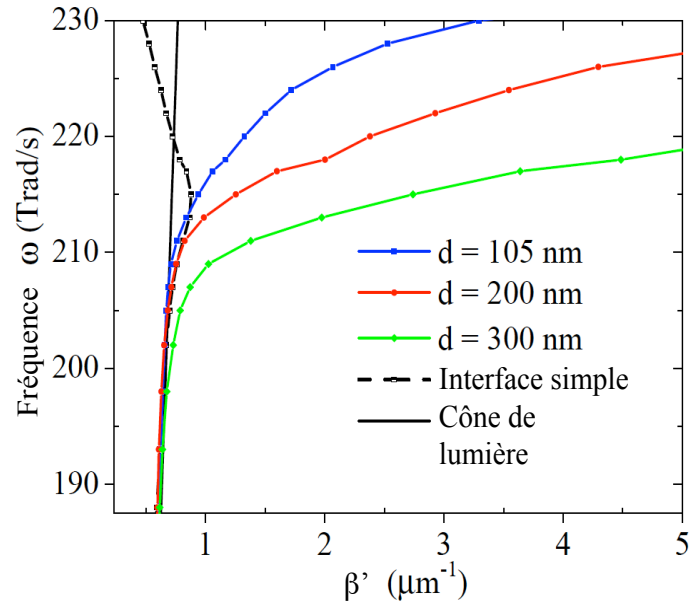


Figure 3.5 – Relation de dispersion du PPS pour une couche mince de verre déposée sur du KBr ($\epsilon_1 = 1,24$) en contact avec de l'air ($\epsilon_3 = 1$) ayant trois épaisseurs $d = 105 - 200$ et 300 nm et dans le cas d'une interface simple.

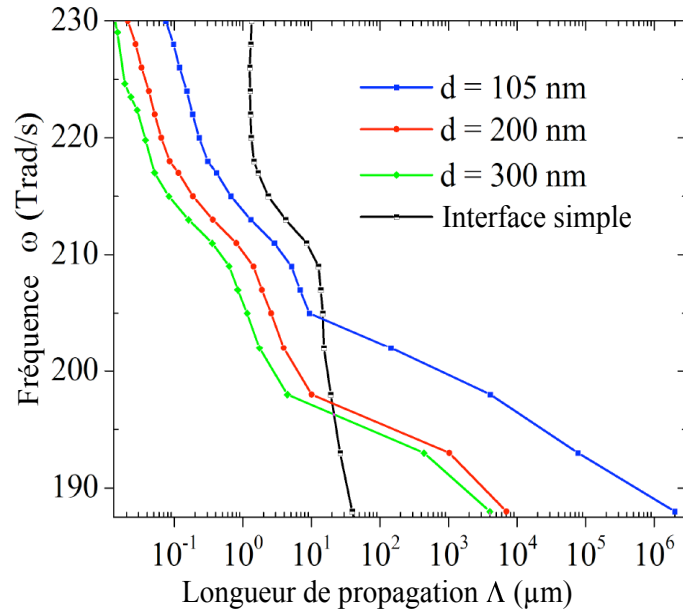


Figure 3.6 – Longueur de propagation du PPS pour une couche mince de verre déposée sur du KBr ($\epsilon_1 = 1,24$) en contact avec de l'air ($\epsilon_3 = 1$) ayant trois épaisseurs $d = 105 - 200$ et 300 nm et dans le cas d'une interface simple.

l'équation (3.1) on peut s'attendre à ce que ces très fortes valeurs contribuent sensiblement à la conductivité thermique due aux PPS.

3.2.2 Tube

Les nombreuses applications du tube en tant que guide d'onde ou cavité résonante donnent à cette géométrie un fort potentiel de conduction de la chaleur. À la différence de la géométrie plane, le champ électrique du PPS le long de l'axe du tube $\mathbf{x}$ s'exprime maintenant sous la forme :

$$E_{jx} = E_{0j} f_j(p_j r) e^{(-i(\beta x + n\theta - \omega t))}, \quad j = 1, 2, 3 \quad (3.20)$$

où E_{0j} est une constante dépendant du milieu j considéré, f est une fonction du rayon satisfaisant aux conditions aux limites, n l'ordre azimutal, θ l'angle azimutal défini en coordonnées cylindriques et le vecteur d'onde transverse p_j est donné par l'équation (2.20). Les équations de Maxwell fournissent la relation de dispersion du PPS se propageant le long de l'axe du tube schématisé en figure 3.2 [122] selon l'expression suivante :

$$A_n B_n = C_n D_n \quad (3.21)$$

avec

$$A_n = \frac{I_n(p_2 a)}{I_n(p_1 a)} - \frac{\epsilon_2 p_1}{\epsilon_1 p_2} \frac{I'_n(p_2 a)}{I'_n(p_1 a)}, \quad (3.22)$$

$$B_n = \frac{K_n(p_2 b)}{K_n(p_3 b)} - \frac{\epsilon_2 p_3}{\epsilon_3 p_2} \frac{K'_n(p_2 b)}{K'_n(p_3 b)}, \quad (3.23)$$

$$C_n = \frac{K_n(p_2 a)}{I_n(p_1 a)} - \frac{\epsilon_2 p_1}{\epsilon_1 p_2} \frac{K'_n(p_2 a)}{I'_n(p_1 a)}, \quad (3.24)$$

$$D_n = \frac{I_n(p_2 b)}{K_n(p_3 b)} - \frac{\epsilon_2 p_3}{\epsilon_3 p_2} \frac{I'_n(p_2 b)}{K'_n(p_3 b)}, \quad (3.25)$$

où I_n et K_n sont les fonctions de Bessel modifiées d'ordre $n = 0, 1, 2, \dots$ et l'apostrophe (') indique la dérivée de la fonction par rapport à son argument. Pour $n = 0$ les champs électriques et magnétiques sont indépendants de l'angle azimutal, tandis que pour $n = 1, 2, 3, \dots$ ce paramètre intervient dans l'expression du champ électromagnétique, lui donnant une dépendance angulaire (modes azimutaux). Par analogie avec l'exemple de la couche mince, l'équation (3.21) peut être très simplifiée dans la limite d'un rayon extérieur très grand ($|p_j|b \gg 1$) ou très petit ($|p_j|b \ll 1$). Dans le premier cas les expressions asymptotiques

des fonctions de Bessel modifiées permettent d'établir que l'équation (3.21) se simplifie en devenant indépendante de n :

$$\left(\frac{p_2}{\epsilon_2} + \frac{p_1}{\epsilon_1}\right) \left(\frac{p_2}{\epsilon_2} + \frac{p_3}{\epsilon_3}\right) = \left(\frac{p_2}{\epsilon_2} - \frac{p_1}{\epsilon_1}\right) \left(\frac{p_2}{\epsilon_2} - \frac{p_3}{\epsilon_3}\right) e^{-2p_2(b-a)}, \quad (3.26)$$

qui dépend des rayons intérieur et extérieur du tube uniquement via leur différence. Supposons que $|p_2 b| \gg 1$ et que l'épaisseur du tube soit du même ordre de grandeur que le rayon extérieur ($b - a \approx b$), le membre de droite de l'équation (3.26) disparaît et le membre de gauche se réduit comme prévu à la relation de dispersion de deux interfaces planes [122 et 121]. Par ailleurs pour $b - a \ll a$ et $|p_2|(b - a) \ll 1$ on a $\exp(-2p_2(b - a)) \approx 1 - 2p_2(b - a)$ et l'équation (3.26) se simplifie en (3.15) pour une couche mince d'épaisseur $d = b - a$.

Dans la limite d'un rayon extérieur très petit ($|p_j|b \ll 1$), l'équation (3.21) devient :

$$\left[1 + \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1} \left(\left(\frac{b}{a}\right)^2 - 1\right)\right] (p_3 a)^2 \ln\left(\frac{p_3 b}{2}\right) = \frac{2\epsilon_3}{\epsilon_1}, \quad n = 0 \quad (3.27)$$

$$\left(\frac{p_2^2}{\epsilon_2} + \frac{p_1^2}{\epsilon_1}\right) \left(\frac{p_2^2}{\epsilon_2} + \frac{p_3^2}{\epsilon_3}\right) = \left(\frac{a}{b}\right)^{2n} \left(\frac{p_2^2}{\epsilon_2} - \frac{p_1^2}{\epsilon_1}\right) \left(\frac{p_2^2}{\epsilon_2} - \frac{p_3^2}{\epsilon_3}\right), \quad n = 1, 2, \dots \quad (3.28)$$

On peut remarquer que l'équation (3.27), décrivant le mode $n = 0$ à symétrie azimutale, est une équation transcendante, tandis que tous les autres modes ($n = 1, 2, \dots$) sont déterminés par l'équation polynomiale (3.28) qui dépend de la géométrie du tube via son rapport a/b et ses rayons intérieur et extérieur. Pour $a \rightarrow 0$ l'équation (3.27) se simplifie en la relation de dispersion du mode à symétrie azimutale pour un nanofil [122]. Dans ce cas les autres modes azimutaux sont donnés par $\frac{p_2^2}{\epsilon_2} + \frac{p_3^2}{\epsilon_3} = 0$ (voir équation (3.28)). En comparant les résultats obtenus *via* les équations (3.27) et (3.28) pour le vecteur d'onde β avec ceux calculés numériquement à partir de l'équation (3.21), nous avons trouvé que l'approche analytique proposée donne une bonne approximation de la propagation du PPS pour un tube de rayon extérieur $b \leq 300$ nm. Pour mieux comprendre la contribution de chaque mode azimutal, on va reprendre, comme pour les couches minces, les cas d'un système symétrique et asymétrique.

3.2.2.1 Cas symétrique : $\epsilon_1 = \epsilon_3$

Dans ce cas $p_3 = p_1$ et l'équation (3.28) devient :

$$\left(\frac{p_2^2}{\epsilon_2} + \frac{p_1^2}{\epsilon_1}\right) = \pm \left(\frac{a}{b}\right)^n \left(\frac{p_2^2}{\epsilon_2} - \frac{p_1^2}{\epsilon_1}\right), \quad (3.29)$$

où le choix du signe positif doit être fait pour satisfaire à la condition $p_1 = 0$ pour $a = b$ (voir équation (2.20)). La solution de l'équation (3.29) concernant

le vecteur d'onde longitudinal β est :

$$\beta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{2\epsilon_1\epsilon_2}{(1-\rho)\epsilon_1 + (1+\rho)\epsilon_2}} \quad (3.30)$$

où $\rho = (a/b)^n$. Ce résultat fournit aussi la relation de dispersion d'un nanofil pour $a = 0$. On peut remarquer que dans ce cas l'équation (3.30) ne diffère de la relation de dispersion pour une interface plane que d'un facteur $\sqrt{2}$ dû aux effets géométriques [122, 121].

Pour une géométrie cylindrique, nous avons vu que la relation de dispersion dépendait principalement du rapport des rayons intérieur et extérieur (pour un rayon extérieur suffisamment petit) et de l'ordre du mode azimutal. Examinons chacun de ces deux paramètres séparément en commençant par l'ordre azimutal. Les figures 3.7 et 3.8 représentent la courbe de dispersion et de longueur de propagation en fonction de la fréquence des trois premiers ordres azimutaux d'un tube de SiO_2 entouré d'air pour une géométrie fixée ($a/b = 0,9$). Plus l'ordre azimutal augmente, plus la courbe de dispersion s'éloigne du cône de lumière. Cependant cette séparation est faible en comparaison avec l'écart entre la courbe de dispersion du fil (obtenu en prenant $a = 0$) et le cône de lumière. Ceci prouve que le PPS a un comportement photonique plus marqué quand il se propage le long d'un tube que le long d'un fil, et que sa longueur de propagation sera plus grande dans le premier cas, comme le montre la figure 3.8. En fait plus le PPS a un comportement photonique marqué, plus sa longueur de propagation sera grande car les pertes diélectriques associées à ce comportement seront plus faibles. Ceci est en accord avec les résultats présentés en figures 3.3, 3.4, 3.5 et 3.6 dans le cas de la couche mince. On s'attend donc à ce que seule la contribution des premiers modes azimutaux soit significative dans le calcul de la conductivité thermique du tube (cf équation 3.2). En outre en comparant les figures 3.4 et 3.8 on observe que les fréquences auxquelles la longueur de propagation montre ses *maxima* et *minima* sont les mêmes pour la couche mince que pour le tube. Ceci indique que, pour ces systèmes symétriques, ces fréquences sont déterminées par la permittivité diélectrique de SiO_2 (cf figure 2.19).

Reste à évoquer le cas particulier du mode d'ordre zéro : pour un rayon extérieur de l'ordre de ou inférieur à 300 nm, la relation de dispersion de ce mode (3.27) fournit des longueurs de propagation faibles par rapport à ceux des autres modes azimutaux présentés en figure 3.8. Cela montre que le PPS ne se propage pas de manière prépondérante le long de nanotubes *via* le mode d'ordre zéro, celui-ci ne sera donc plus pris en compte dans le reste de l'étude.

Le premier mode azimutal correspond donc au mode où le PPS possède sa plus grande longueur de propagation pour une géométrie donnée. Les variations de la propagation du PPS en fonction de sa géométrie sont illustrées par les figures 3.9 et 3.10. La relation de dispersion ainsi que la longueur de propagation en fonction de la fréquence sont tracées pour le premier mode azimutal avec

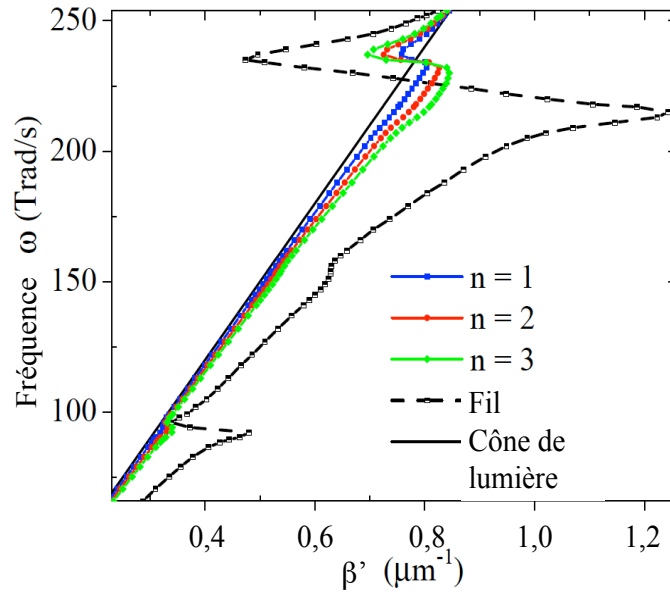


Figure 3.7 – Relation de dispersion du PPS pour un tube de verre dans l'air. Les calculs ont été réalisés pour les trois premiers modes azimutaux avec une géométrie fixée à $a/b = 0,9$ et pour un fil de rayon $a = 200$ nm.

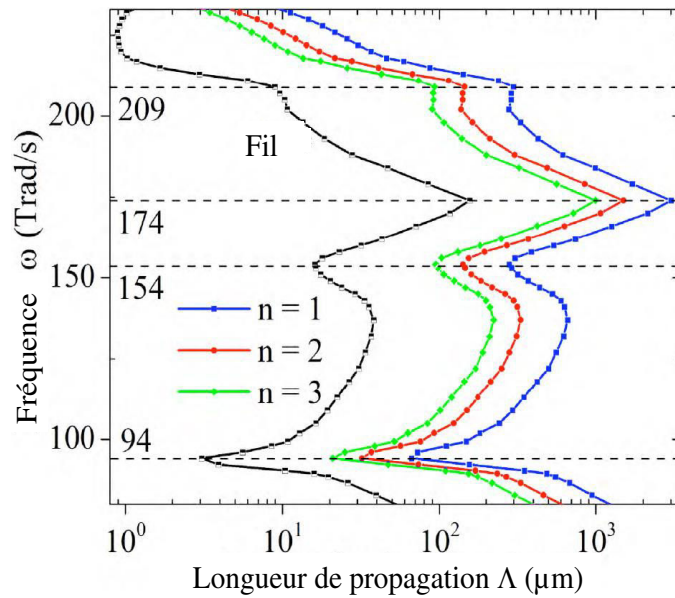


Figure 3.8 – Longueur de propagation du PPS en fonction de la fréquence pour un tube de verre dans l'air. Les calculs ont été réalisés pour les trois premiers modes azimutaux avec une géométrie fixée à $a/b = 0,9$ et pour un fil de rayon $a = 200$ nm.

des rapports a/b variant entre 0,1 et 0,9. Plus l'épaisseur de la paroi du tube augmente, plus la courbe de dispersion s'éloigne du cône de lumière et se rapproche de celle du fil, ce qui est cohérent (cf. figure 3.9). Le PPS perd alors son comportement photonique au profit du phononique, ce qui se traduit par une diminution de sa longueur de propagation comme en témoigne la figure 3.10. Les mêmes effets que pour la couche mince se produisent à savoir que plus les parois du tube sont fines, plus les pertes diélectriques limitant la propagation du PPS diminuent. Ceci montre que d'un point de vue expérimental il faudra privilégier les nanotubes les plus fins pour observer un phénomène de transport de chaleur dû aux PPS exacerbé.

Néanmoins les résultats présentés pour un rapport $a/b = 0,9$ correspondent à une épaisseur de tube de 10 nm. Dans ce cas des effets de non-localité de la constante diélectrique commencent à apparaître, ce qui limite notre approche de description du PPS pour des nanotubes avec des épaisseurs plus faibles. En effet de nouvelles résonances de surface peuvent apparaître comme l'ont montré Chalopin *et al.* pour une couche mince de MgO d'épaisseurs variant de 0,4 à 4 nm [22].

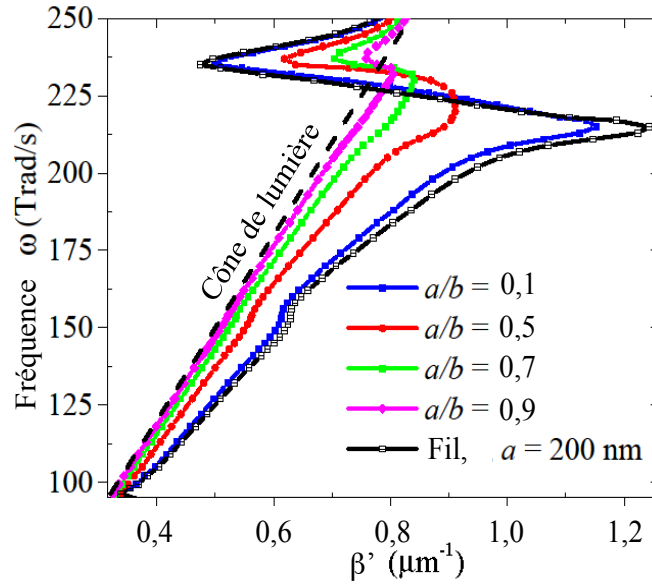


Figure 3.9 – Relation de dispersion du PPS pour un tube de verre dans l'air. Les calculs ont été réalisés pour le premier mode azimutal ($n = 1$) avec une géométrie a/b variant de 0,1 à 0,9 et pour un fil de rayon $a = 200$ nm.

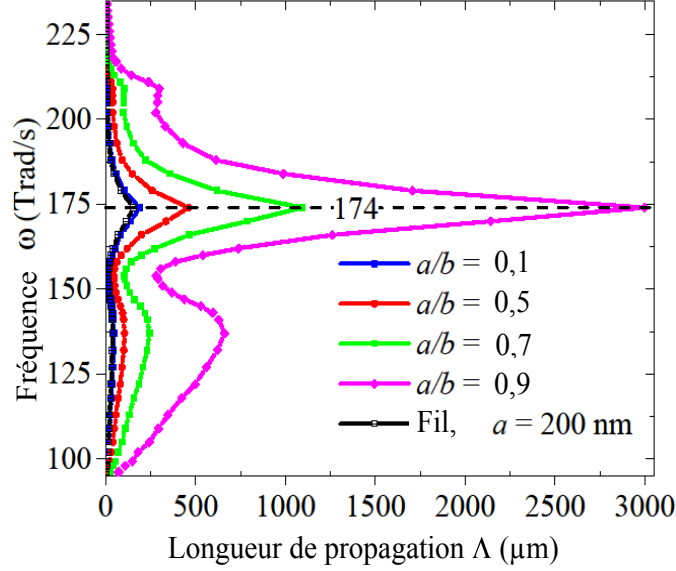


Figure 3.10 – Longueur de propagation du PPS en fonction de la fréquence pour un tube de verre dans l'air. Les calculs ont été réalisés pour le premier mode azimutal ($n = 1$) avec une géométrie a/b variant de 0,1 à 0,9 et pour un fil de rayon $a = 200$ nm.

3.2.2.2 Cas asymétrique : $\epsilon_1 \neq \epsilon_3$

Dans ce cas, en combinant les équations (2.20) et (3.28) on obtient la relation de dispersion :

$$\beta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_2} \sqrt{\frac{\epsilon_2(\epsilon_1 + \epsilon_3) + 2\epsilon_1\epsilon_3 - \sqrt{\epsilon_2^2\Delta^2 + 4\epsilon_1\epsilon_3\delta_-}\rho^2}{\delta_+ - \delta_- \rho^2}}, \quad (3.31)$$

avec $\Delta = \epsilon_1 - \epsilon_3$ et $\delta_{\pm} = (\epsilon_2 \pm \epsilon_1)(\epsilon_2 \pm \epsilon_3)$. Pour $\Delta = 0$ l'équation (3.31) se simplifie en (3.30) du système symétrique, comme prévu. De plus le vecteur d'onde β n'est pas modifié si on échange les milieux à l'intérieur et à l'extérieur du tube ($[\beta(\epsilon_1, \epsilon_3) = \beta(\epsilon_3, \epsilon_1)]$). Cette propriété n'est valable que pour le vecteur d'onde axial β , mais pas pour le radial p_j à cause de la symétrie du système le long de l'axe du tube. Une analyse détaillée de l'équation (3.31) pour $\Delta \ll \epsilon_1, \epsilon_3$ montre qu'il n'y a pas de condition de seuil sur le rapport a/b pour avoir une onde évanescente (partie imaginaire de β nulle) comme c'est le cas pour la couche mince asymétrique d'épaisseur $d = d_c$. Les tracés de la relation de dispersion et de la longueur de propagation Λ en fonction de la fréquence sont représentés en figures 3.11 et 3.12 pour les trois premiers modes azimutaux d'un tube de verre déposé sur un fil de KBr et entouré d'air. La relation de dispersion et la longueur de propagation suivent un comportement similaire à ceux présentés respectivement en figures 3.7 et 3.8 avec néanmoins des variations brutales proches des *minima* et *maxima* des courbes, dues à la dissymétrie

des milieux extérieurs aux parois du tube. Les longueurs de propagation obtenues pour le tube asymétrique atteignent des valeurs maximales de l'ordre du millimètre et sont similaires à celles du tube symétrique. Cependant ces deux structures présentent des longueurs de propagation plus faibles d'environ deux ordres de grandeur que dans le cas de la couche mince (cf figures 3.4 et 3.6). Cela prouve que la contribution du PPS à la conductivité thermique est plus grande pour une géométrie plane que pour une structure cylindrique.

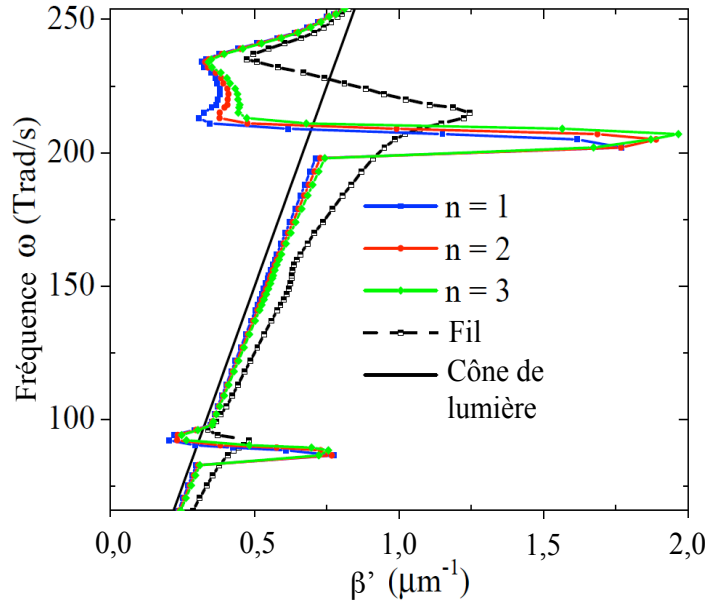


Figure 3.11 – Relation de dispersion du PPS pour un tube de verre déposé sur un fil de KBr ($\epsilon_1 = 1,24$) et entouré d'air ($\epsilon_3 = 1$). Les calculs ont été réalisés pour les trois premiers modes azimutaux avec une géométrie fixée à $a/b = 0,9$ et pour un fil de rayon $a = 200$ nm.

3.3 Répartition de l'énergie : vecteur de Poynting

Dans le cas d'une couche mince, le vecteur de Poynting selon une direction du plan de la surface (axe $\mathbf{x}$) est donné par la relation :

$$S_{jx} = \frac{\omega}{2|p_j|^4} \text{Re}(\beta \epsilon_j^*) \left| \frac{\partial E_{jx}^0}{\partial z} \right|^2 e^{(-2p'_j|z|)} e^{(-\frac{x}{\Lambda})}, j = 1, 2, 3 \quad (3.32)$$

La figure 3.13 montre la distribution du vecteur de Poynting pour une section d'une couche mince de verre d'épaisseur $d = 105$ nm selon cette direction. Pour la couche mince symétrique (lignes en pointillés) comme pour celle asymétrique (lignes continues), le flux d'énergie à l'intérieur de la couche mince est

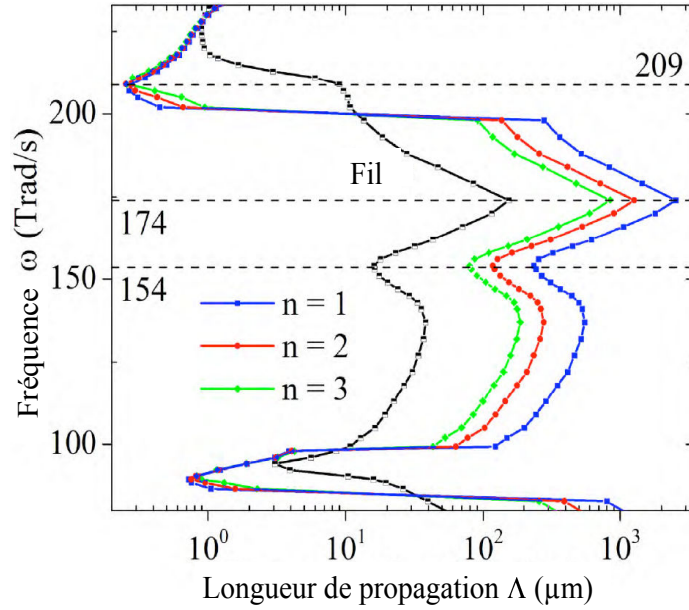


Figure 3.12 – Longueur de propagation du PPS en fonction de la fréquence pour un tube de verre déposé sur un fil de KBr ($\epsilon_1 = 1,24$) et entouré d'air ($\epsilon_3 = 1$). Les calculs ont été réalisés pour les trois premiers modes azimutaux avec une géométrie fixée à $a/b = 0,9$ et pour un fil de rayon $a = 200$ nm.

négligeable par rapport à celui qui se propage à l'extérieur de la couche. C'est pourquoi cette couche absorbante rend malgré tout possible la propagation de PPS sur de grandes distances. À la fréquence $\omega = 20,9 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ les flux d'énergie dans les milieux environnants air/air et KBr/air sont très proches à cause de la faible différence entre leurs permittivités ($\epsilon_1 - \epsilon_3 = 0,24$). Par contre ce n'est pas le cas à la fréquence $\omega = 18,8 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ où l'épaisseur critique ($d_c = 104$ nm) est proche de l'épaisseur du film. Le flux d'énergie est plus concentré aux interfaces pour le système asymétrique que pour celui symétrique où l'énergie se propage sur des distances transverses beaucoup plus importantes dans l'air. Ceci est dû à la très faible absorption de l'air. La forte concentration de l'énergie aux interfaces de la couche mince asymétrique est aussi liée aux très grandes longueurs de propagation du PPS dans ce système par rapport au système symétrique, comme en témoignent les figures 3.4 et 3.6. Le flux d'énergie dans le substrat (KBr) augmente aux dépens de celui dans l'air de l'autre côté du film. Cette redistribution de l'énergie avec des valeurs relativement fortes à l'interface KBr/couche mince est liée à la différence entre les permittivités des milieux extérieurs, comme nous l'avons expliqué lors de l'étude de la relation de dispersion.

Quant à la géométrie cylindrique, étant donné que les longueurs de propagation étaient similaires entre les cas symétrique et asymétrique, nous ne nous intéresserons qu'au cas symétrique. De plus ce dernier cas correspond aux échantillons

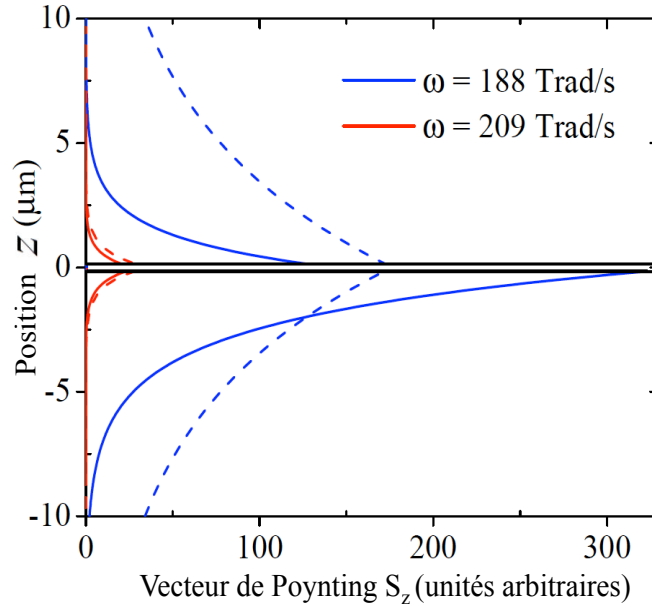


Figure 3.13 – Distribution du vecteur de Poynting à $x = 0$ pour une couche mince de verre d'épaisseur $d = 105$ nm. Les lignes continues correspondent au cas asymétrique tandis que celles en pointillés correspondent au cas symétrique.

étudiés dans la partie expérimentale. Le vecteur de Poynting le long de l'axe du cylindre (axe $\mathbf{x}$) s'écrit alors :

$$S_{jx} = \frac{\omega}{2|p_j|^4} \text{Re}(\beta \epsilon_j^*) \left[\left| \frac{\partial E_{jx}^0}{\partial r} \right|^2 + \frac{n^2}{r^2} |E_{jx}^0|^2 \right] e^{(-2p_j' r)} e^{-\frac{x}{\Lambda}}, j = 1, 2, 3 \quad (3.33)$$

La figure 3.14 représente la distribution du vecteur de Poynting pour une demi-section d'un tube de verre avec un rapport $a/b = 0,9$ selon l'axe du tube (axe $\mathbf{x}$). Comme pour la couche mince, le flux d'énergie du PPS est très faible dans la paroi de verre (située entre $r = 0,09 \mu\text{m}$ et $r = 0,10 \mu\text{m}$) contrairement à sa contribution dans l'air environnant. Cependant la répartition radiale du flux d'énergie est très différente entre l'intérieur du tube où elle est constante et l'extérieur où on observe une décroissance exponentielle similaire à celle de la couche mince, quelle que soit la fréquence. Le flux d'énergie se propage préférentiellement à l'intérieur du tube, confirmant l'idée de couplage des PPS à l'intérieur du tube de verre permettant d'améliorer la propagation du rayonnement. Les formules du vecteur de Poynting nous montrent que le paramètre Λ défini précédemment pour l'amplitude du champ électromagnétique du PPS avec un facteur $1/2$ correspond en fait à la longueur d'atténuation de son flux d'énergie. Ainsi dans les deux géométries étudiées, une augmentation de la longueur de propagation induit une amélioration du transport de flux d'énergie du PPS. Ceci entraîne tout naturellement une augmentation de la conductivité

thermique due aux PPS, comme nous allons le voir par la suite.

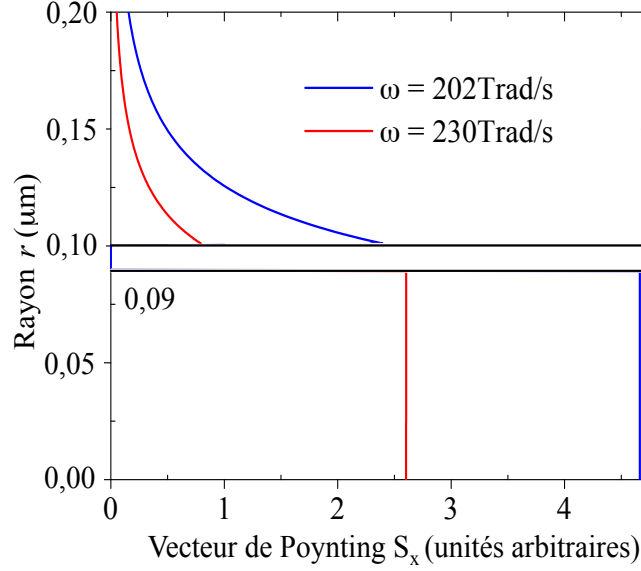


Figure 3.14 – Distribution du vecteur de Poynting du premier mode azimuthal ($n = 1$) selon l'axe du tube à $x = 0$ pour une demi-section d'un tube de verre avec un rapport $a/b = 0,9$. La paroi de verre se trouve entre les rayons $r = 0,09 \mu m$ et $r = 0,10 \mu m$, le reste étant de l'air.

3.4 Conductivité thermique

Dans cette partie la contribution du PPS à la conductivité thermique est analysée pour la couche mince et le tube. Cette étude met l'accent sur l'effet des permittivités des milieux environnants ainsi que sur l'influence de la taille et de la forme.

3.4.1 Conductivité thermique de la couche mince

La figure 3.15 montre pour trois valeurs de température absolue l'intégrande de la conductivité thermique définie dans l'équation (3.1) dans le cas d'une couche mince de SiO_2 dans l'air en fonction de la fréquence. Le *maximum* de ce spectre à $17,4 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ coïncide avec celui de la longueur de propagation en figure 3.4. Cela indique que la principale contribution du PPS à la conductivité thermique κ (aire sous la courbe) provient d'un faible intervalle autour de cette fréquence. Le tracé de la conductivité thermique cumulée en figure 3.16 le confirme. L'augmentation de la conductivité thermique présente un point d'inflexion à $17,4 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ avant d'atteindre sa valeur totale pour de plus hautes fréquences ($\omega > 20 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$). L'intégrande, et donc la conductivité

thermique κ , augmente avec la température (cf figure 3.17), ce qui est aussi le cas général pour la conductivité thermique phononique des diélectriques [25]. Par contre la figure 3.17 indique que la conductivité thermique due aux PPS diminue quand l'épaisseur du film augmente, voire que $\kappa \rightarrow 0$ pour une épaisseur $d > 200$ nm. Cela montre que cette conductivité thermique devient prépondérante pour une couche mince uniquement si son épaisseur est nanométrique et négligeable à l'échelle micrométrique, ceci avait déjà été mentionné par l'équipe de Chen *et al.* [24]. On remarque aussi que plus l'épaisseur du film diminue, plus la contribution du PPS à la conductivité thermique peut dépasser très largement la contribution phononique du matériau massif ($1,4 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ à température ambiante). Cette contribution du PPS peut alors être suffisamment importante pour compenser la diminution bien connue de la contribution phononique quand l'épaisseur du film diminue [25 et 41].

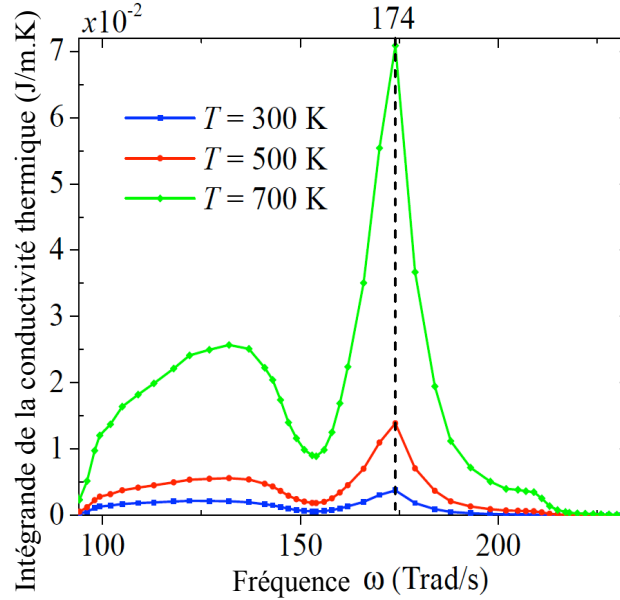


Figure 3.15 – Spectre de la conductivité thermique pour une couche mince de SiO_2 suspendue dans l'air d'épaisseur $d = 100$ nm et pour trois températures $T = 300$ K, 500 K et 700 K.

La dépendance de la conductivité thermique due aux PPS en fonction de l'épaisseur d'une couche mince de SiO_2 déposée sur du KBr et entourée d'air est représentée en figure 3.18 pour trois températures différentes. A cause de l'asymétrie du système ($\epsilon_1 \neq \epsilon_3$) et en accord avec les équations (3.16) et (3.17) et les figures 3.5 et 3.6, le PPS ne peut contribuer à la conductivité thermique que pour une épaisseur de film plus grande que la valeur maximale de l'épaisseur critique d_c définie par l'équation (3.19) ($d > 104$ nm). Dans l'intervalle d'épaisseur de film considéré et pour les trois températures choisies, la contribution du PPS à κ est plus grande que celle présentée en figure 3.17 pour la même

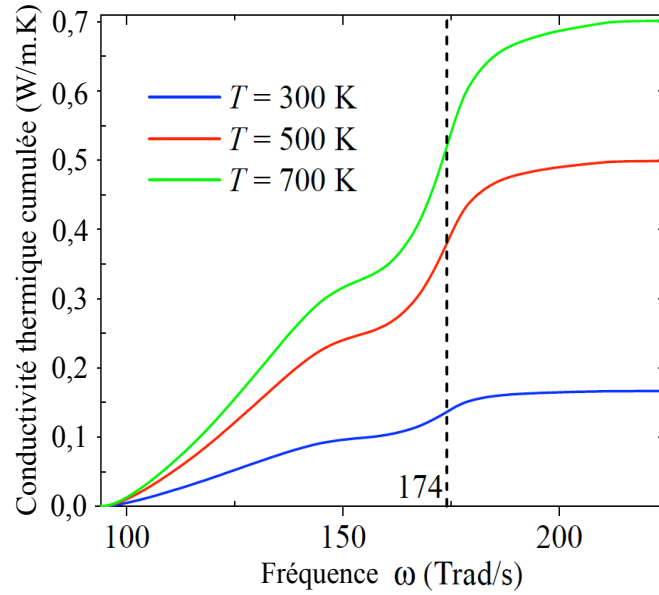


Figure 3.16 – Conductivité thermique cumulée pour une couche mince de SiO_2 suspendue dans l'air d'épaisseur $d = 100$ nm et pour trois températures $T = 300$ K, 500 K et 700 K.

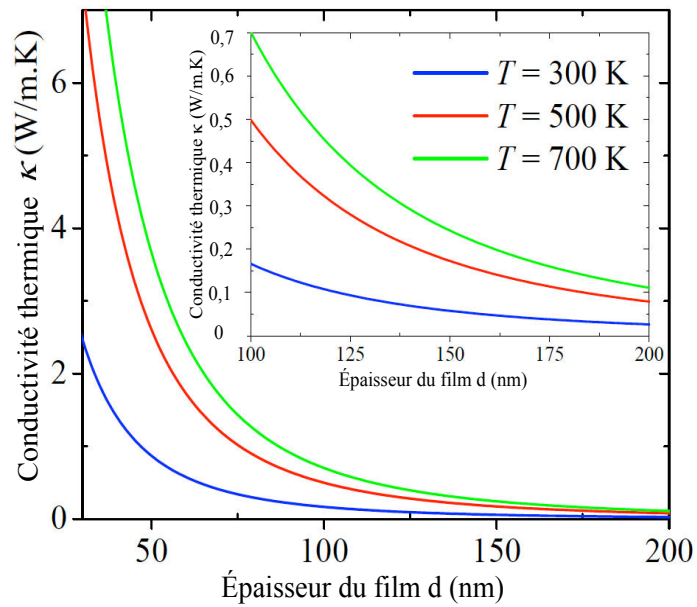


Figure 3.17 – Tracé de la conductivité thermique d'une couche mince de SiO_2 suspendue dans l'air en fonction de son épaisseur et pour trois températures $T = 300$ K, 500 K et 700 K.

couche mince de SiO_2 mais suspendue dans l'air. Par exemple pour $d = 125$ nm l'augmentation est d'environ 100 %. Ainsi l'asymétrie des milieux environnants peut être très efficace pour augmenter la conductivité thermique due aux PPS par rapport à celle obtenue pour un système symétrique. L'épaisseur critique, et donc l'épaisseur du film autorisant la propagation du PPS, peut être fortement réduite en considérant des milieux de permittivité beaucoup plus grande que l'air comme le montre l'équation (3.19). Cela permettrait d'augmenter la conductivité thermique due aux PPS d'autant que les épaisseurs de film en jeu sont faibles ($d < 104$ nm).

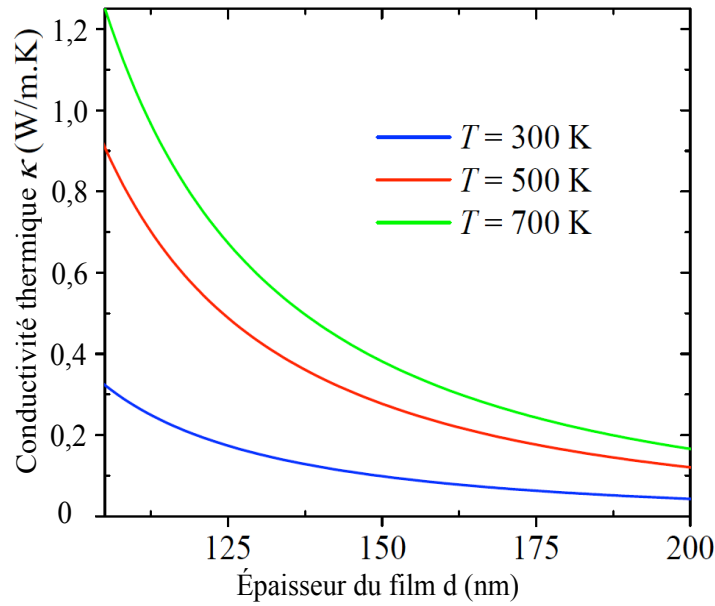


Figure 3.18 – Tracé de la conductivité thermique d'une couche mince de SiO_2 déposée sur du KBr et entourée d'air en fonction de son épaisseur et pour trois températures $T = 300$ K, 500 K et 700 K.

3.4.2 Conductivité thermique du tube

Les figures 3.19 et 3.20 représentent respectivement la contribution du PPS à la conductivité thermique d'un tube de SiO_2 entouré d'air pour les cinq premiers modes azimutaux et pour trois températures différentes. Quel que soit l'ordre du mode azimutal et quelle que soit la température, la conductivité κ augmente avec le rapport des rayons a/b . On en déduit que plus le tube est fin, plus la conductivité thermique due aux PPS est importante, ce qui est en accord avec notre étude de la couche mince plane. La figure 3.20 montre que la contribution principale du PPS à la conductivité thermique provient du premier mode azimutal ($n = 1$). La contribution des modes d'ordre plus élevé diminue quand l'ordre n augmente. Quand le rayon intérieur a tend vers zéro ($a/b \rightarrow 0$) la

contribution de tous les modes azimutaux converge vers $0,046 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ qui est la conductivité thermique d'un nanofil (cf équation (3.30)). La conductivité thermique totale due aux PPS a été calculée en sommant les contributions des cinq premiers modes azimutaux. Pour les modes d'ordre azimutal plus élevé l'intensité de leurs champs électromagnétiques associés est fortement atténuée [55], leur contribution à la propagation du PPS n'est donc pas significative. Par ailleurs la conductivité thermique totale due aux PPS augmente avec la température (cf figure 3.20), on retrouve ce que l'on avait déjà observé pour une couche mince en figures 3.17 et 3.18.

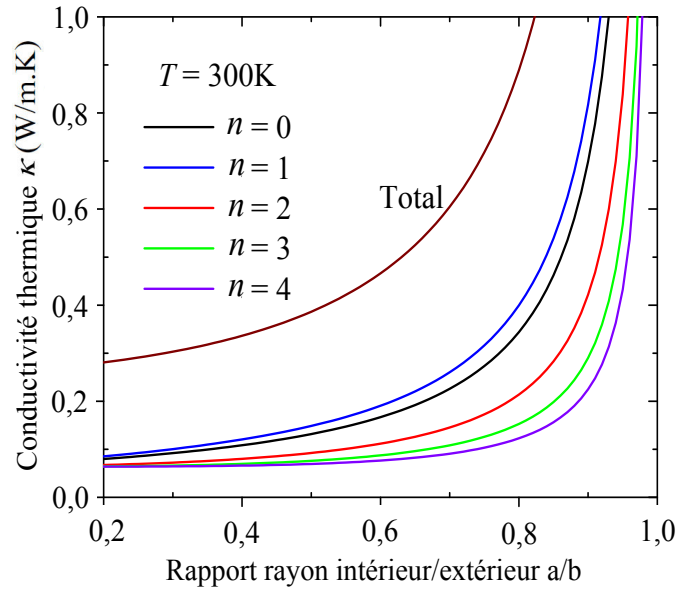


Figure 3.19 – Contribution des cinq premiers modes azimutaux à la conductivité thermique due aux PPS en fonction du rapport rayon intérieur sur rayon extérieur d'un tube de SiO_2 entouré d'air.

Alors que la conductivité thermique due aux PPS d'un tube peut être du même ordre de grandeur que son équivalent phononique, celle-ci prend des valeurs beaucoup plus fortes pour une couche mince. Ainsi la géométrie plane semble être plus adaptée que la cylindrique pour améliorer la conductivité thermique de matériaux *via* la propagation de PPS. Néanmoins la géométrie cylindrique possède d'autres atouts comme la quantification du transport de chaleur par PPS que nous allons détailler par la suite.

3.5 Quantification du transport de chaleur par PPS

Les résultats de cette partie ont fait l'objet d'une publication [87] à laquelle le lecteur peut se référer si besoin.

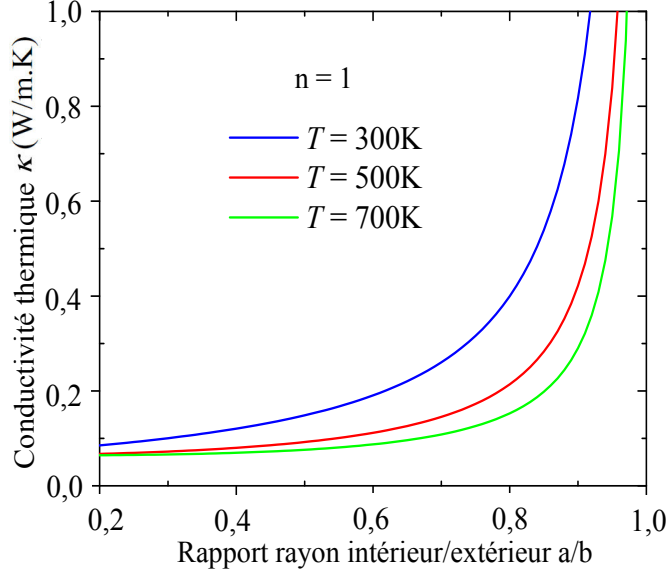


Figure 3.20 – Conductivité thermique totale due aux PPS en fonction du rapport rayon intérieur sur rayon extérieur d’un tube de SiO_2 entouré d’air pour trois températures différentes.

3.5.1 Contexte de la quantification du transport thermique

Durant ces dernières années, l’étude du transport de chaleur dans des systèmes unidimensionnels à faible température a connu un énorme succès grâce à la découverte d’une quantification de leur conductance en multiples entiers d’une constante universelle : un quantum. Pour la conduction de chaleur, le quantum des électrons est égal à celui des phonons et vaut $\pi^2 k_B^2 T / 3h$ avec k_B et h les constantes de Boltzmann et de Planck et T la température [43, 98, 120, 21 et 114]. Le montant de chaleur minimal transporté est le même, que le porteur soit un électron ou un phonon, et ce résultat a été démontré théoriquement *via* le formalisme de Landauer [16, 66, 67, 99] avant d’être démontré expérimentalement [26 et 104].

Le transport d’énergie unidimensionnel n’apparaît que dans le régime balistique [98 et 104] c’est-à-dire quand le libre parcours moyen des porteurs d’énergie est du même ordre ou plus grand que les dimensions du matériau. Comme le libre parcours moyen des électrons ou des phonons ne dépasse guère quelques nanomètres pour une majorité de matériaux à température ambiante [60 et 109], le transport 1D de ces porteurs est généralement étudié pour des matériaux nanométriques à très basse température. En effet on utilise le fait que leur libre parcours moyen augmente quand la température diminue. Par exemple un nanofil de GaAs de section carrée de 50^2 nm^2 ne supportera une conduction thermique 1D que pour des températures inférieures à 1 K [98]. Par contre ce n’est pas le cas des PPS étudiés jusqu’ici (plus précisément des modes de PPS

de *Zenneck-Sommerfeld* définis en 2.2.2) pour lesquels le libre parcours moyen (aussi appelé longueur de propagation) dépend principalement de la permittivité diélectrique des milieux environnants et non directement de la température. Cela montre que la conduction thermique 1D par les PPS n'est pas restreinte aux basses températures comme c'est le cas des électrons et des phonons. Dans ces conditions si la conductance thermique des PPS est quantifiée, cette quantification devrait pouvoir exister même à température ambiante.

La suite de l'étude va donc s'attacher à démontrer théoriquement que la conductance thermique due aux PPS pour un fil unidimensionnel est quantifiée pour n'importe quelle température égale ou inférieure à la température ambiante. De plus comme la contribution du PPS à la conduction thermique augmente quand la taille des systèmes étudiés diminue (cf étude de la couche mince et du tube), cette quantification devrait être observée pour des nanofils polaires.

3.5.2 Modélisation de la conductance thermique par le formalisme de Landauer

Considérons un fil en contact thermique avec deux réservoirs thermostatés aux températures T_1 et T_2 avec $T_1 > T_2$ (cf figure 3.21). On commence par donner le résultat général de la conduction thermique 1D le long du fil avant de l'appliquer aux PPS. Supposons que le fil soit assez fin pour conduire la chaleur principalement suivant son axe (fil 1D), le flux de chaleur Q est donné par la formule de Landauer [66 et 67] :

$$Q = \sum_{n=1}^N \int_0^{k_n^{max}} \frac{dk}{2\pi} \hbar \omega V [f_\omega(T_1) - f_\omega(T_2)] \tau(k), \quad (3.34)$$

où k , $\omega = \omega(k)$ et $V = \frac{d\omega}{dk}$ sont le vecteur d'onde, la fréquence et la vitesse de groupe des porteurs d'énergie se propageant dans le fil, f_ω est la fonction de distribution de ces porteurs dans les réservoirs thermostatés, τ leur probabilité de transmission entre le nanofil et les réservoirs et k_n^{max} le vecteur d'onde maximal pour lequel les modes de la branche n peuvent se propager.

En supposant que la différence de température $T_1 - T_2 \ll T = \frac{T_1 + T_2}{2}$, les fonctions de distribution de l'équation (3.34) se simplifient en $f_\omega(T_1) - f_\omega(T_2) = \Delta T \frac{\partial f_\omega}{\partial T}$. La conductance thermique du nanofil $G = \frac{Q}{\Delta T}$ peut alors s'écrire :

$$G = \frac{1}{2\pi} \sum_{n=1}^N \int_{\omega_n^{min}}^{\omega_n^{max}} \hbar \omega \frac{\partial f_\omega(T)}{\partial T} \tau(k) d\omega. \quad (3.35)$$

Les paramètres ω_n^{min} et ω_n^{max} correspondent aux fréquences les plus basses et les plus hautes (fréquences de coupure) de chaque branche n . L'équation (3.35) montre que la conductance thermique G ne dépend de la relation de dispersion qu'à travers ses fréquences de coupure. On présume que l'effet de forme au niveau des deux contacts entre le nanofil et les réservoirs est suffisamment faible

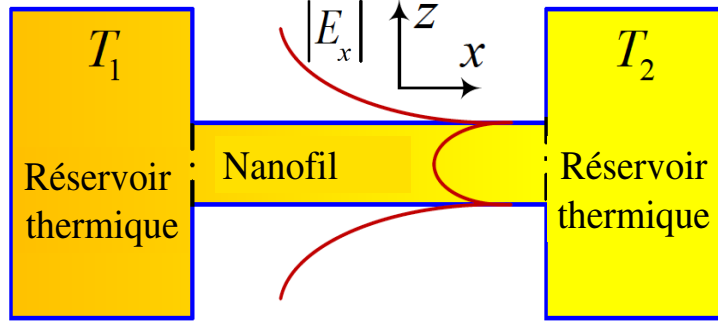


Figure 3.21 – Schéma du nanofil en contact thermique avec les deux bains thermostatés.

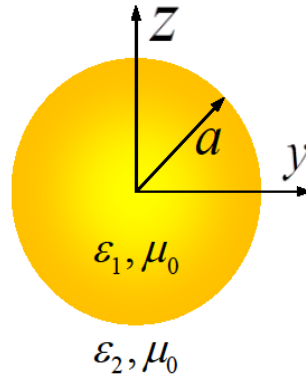


Figure 3.22 – Section circulaire du nanofil étudié.

pour ne pas limiter la transmission des porteurs d'énergie le long du nanofil, ce qui signifie que $\tau = 1$. Expérimentalement cette approximation peut être valide en utilisant des techniques de croissance par épitaxie qui fournissent un moyen de contrôle très précis des formes à cette échelle de longueur [111]. De

plus, avec les PPS, les longueurs de propagation en jeu sont très grandes [85], ce qui assure une bonne transmission de ces porteurs le long du nanofil. Les PPS suivent une loi de distribution de Bose-Einstein qui permet de réécrire l'équation (3.35) en :

$$G = \frac{k_B^2 T}{h} \sum_{n=1}^N \int_{\frac{A_n}{T}}^{\frac{B_n}{T}} \frac{x^2 e^x}{(e^x - 1)^2} dx, \quad (3.36)$$

avec $A_n = \frac{\hbar \omega_n^{min}}{k_B}$ et $B_n = \frac{\hbar \omega_n^{max}}{k_B}$. L'intégrale dans l'équation (3.36) peut être calculée analytiquement, ce qui donne :

$$G = \frac{k_B^2 T}{h} \sum_{n=1}^N \left[J\left(\frac{A_n}{T}\right) - J\left(\frac{B_n}{T}\right) \right], \quad (3.37)$$

où

$$J(x) = \frac{x^2}{e^x - 1} - 2x \ln(1 - e^{-x}) + 2 \sum_{m=1}^{\infty} \frac{e^{-mx}}{m^2}. \quad (3.38)$$

L'équation (3.37) montre que la conductance thermique dépend des valeurs relatives des fréquences de coupure normalisées par rapport à la température. La fonction $J(x)$ est positive pour tout $x \leq 0$; pour $x \ll 1$ elle se simplifie en $J(x) \approx \frac{\pi^2}{3} - x$ et pour $x \gg 1$ $J(x) \approx [1 + (x + 1)^2] \exp(-x)$ [1]. Si $A_n = 0$ pour les N_0 premiers modes, la présence possible de modes avec une fréquence de coupure minimale nulle ($\omega_n^{min} = 0$) est prise en compte, tandis que $A_n > 0$ pour $n > N_0$. Grâce à cette hypothèse l'équation (3.37) prend la forme :

$$G = N_0 G_0 + \frac{k_B^2 T}{h} \left[\sum_{n=N_0+1}^N J\left(\frac{A_n}{T}\right) - \sum_{n=1}^N J\left(\frac{B_n}{T}\right) \right], \quad (3.39)$$

avec $G_0 = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3h}$ qui est le quantum universel de conductance thermique [98]. L'équation (3.39) peut être examinée selon trois cas limites. D'abord pour de faibles températures ($T \ll A_n$) la fonction J dans les deux sommes converge exponentiellement vers zéro, ce qui rend ces sommes négligeables devant le premier terme $N_0 G_0$. Ainsi l'équation (3.39) se simplifie en $G = N_0 G_0$ qui est la quantification bien connue de la conductance thermique des phonons et des électrons à faible température [98, 99 et 104]. Pour des températures intermédiaires ($A_n \ll T \ll B_n$) on a $J(\frac{A_n}{T}) \approx \frac{\pi^2}{3} - \frac{A_n}{T}$ et $J(\frac{B_n}{T}) \rightarrow 0$, l'équation (3.39) devient alors :

$$G = N_0 G_0 + \frac{k_B}{2\pi} \sum_{n=N_0+1}^N \omega_n^{min}, \quad (3.40)$$

qui dépend linéairement du nombre total de modes N et de la température *via* le quantum de conductance thermique. Ces deux premiers cas montrent que pour $T \ll B_n$ la conductance thermique présente une dépendance linéaire à la température. Enfin pour des températures élevées ($T \gg B_n$), l'équation (3.39) se réduit à $G = G_\infty$ avec :

$$G_\infty = \frac{k_B}{2\pi} \left(\sum_{n=1}^N \omega_n^{max} - \sum_{n=N_0+1}^N \omega_n^{min} \right). \quad (3.41)$$

Ainsi pour des températures élevées, G est indépendant de T et G_0 . La dépendance à la relation de dispersion du matériau n'apparaît qu'à travers la différence entre la somme des fréquences de coupure minimales et maximales. La figure 3.23 montre le tracé de la conductance thermique en fonction de la température normalisée d'un nanofil pour un unique mode transmis. On observe que G présente trois régimes de conduction de la chaleur déterminée par le rapport $\frac{T}{B_1}$ et que la quantification apparaît pour le régime de faible température ($T \ll B_1$). Notons que pour des phonons dans un nanofil de GaAs on a $B_1 \approx 2$ K[98].

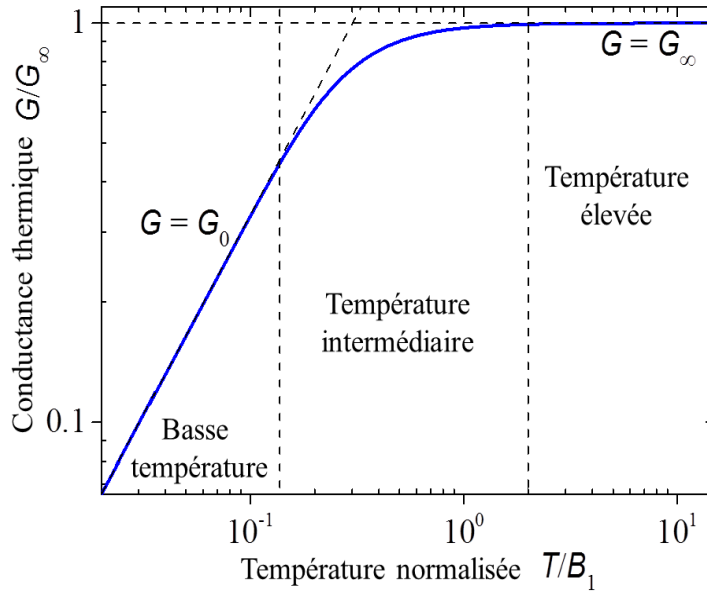


Figure 3.23 – Tracé de la conductance thermique d'un nanofil en fonction de la température pour un unique mode transmis ($N = N_0 = 1$).

3.5.3 Caractéristiques du PPS appliquées à la conductance thermique

Revenons à l'étude de PPS se propageant le long de l'axe d'un fil polaire de permittivité diélectrique $\epsilon_1(\omega)$ plongé dans un milieu extérieur ayant une per-

mittivité indépendante de la fréquence $\epsilon_2 > 0$ pour un intervalle très large de fréquence comme l'air. Les deux milieux sont supposés non magnétiques ($\mu = 1$). La relation de dispersion du PPS dans ce type de géométrie a déjà été étudiée, on rappelle qu'elle correspond à l'équation (3.30) pour un rayon intérieur nul (en supposant que le rayon du nanofil a est suffisamment petit de sorte que $|p_j a| < 1$, $j = 1, 2$ (voir la figure 3.22), ce qui donne :

$$\beta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{2\epsilon_1\epsilon_2}{(\epsilon_1 + \epsilon_2)}} \quad (3.42)$$

La relation de dispersion devient indépendante du rayon du nanofil ainsi que du degré du mode azimutal, en effet les modes azimutaux ne contribuent plus à la propagation du PPS lorsque le rayon du nanofil est suffisamment faible. Cette condition est réalisée dans le cas de SiC ou de SiO₂ pour des rayons inférieurs à 300 nm. En utilisant les mêmes conventions que pour la couche mince ou le tube, à savoir $\epsilon_1 = \epsilon'_1 - i\epsilon''_1$ et $\beta = \beta' - i\beta''$, on obtient les expressions des parties réelles $\beta' = \xi_+$ et imaginaires $\beta'' = \xi_-$ du vecteur d'onde axial avec :

$$\xi_{\pm} = \frac{\omega}{c} \frac{\sqrt{\epsilon_2}}{|\epsilon_1 + \epsilon_2|} \sqrt{|\epsilon_1||\epsilon_1 + \epsilon_2| \pm |\epsilon_1|^2 \pm \epsilon'_1\epsilon_2} \quad (3.43)$$

À ce stade trois remarques s'imposent :

- $\beta' > 0$ indique que la propagation des PPS le long du fil se fait en partant du réservoir chaud vers le froid.
- Quand la fréquence tend vers zéro ou l'infini la permittivité diélectrique du fil ainsi que la racine carré dans l'équation (3.42) tendent vers une constante indépendante de la fréquence. En conséquence le vecteur d'onde $\beta \propto \frac{\omega}{c} \rightarrow 0$ (ou $\beta \propto \frac{\omega}{c} \rightarrow \infty$), ce qui signifie que $\beta'(\omega = 0) = 0$ (ou $\beta'(\omega \rightarrow \infty) \rightarrow \infty$). La relation de dispersion du PPS se propageant le long d'un nanofil commence donc pour $A_1 = 0$, finit pour $B_1 \rightarrow \infty$ et ne possède qu'une seule branche ($N = N_0 = 1$).
- Étant donné que $|\epsilon_1||\epsilon_1 + \epsilon_2| > |\epsilon_1|^2 + \epsilon'_1\epsilon_2$, la partie imaginaire $\beta'' > 0$, ce qui permet de garder la même définition de la longueur de propagation du PPS donnée par (3.12).

Toujours à partir de l'équation (3.42), les vecteurs d'onde radiaux à l'intérieur et à l'extérieur du nanofil s'expriment sous la forme $p_{1,2} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_{1,2}(\epsilon_{2,1} - \epsilon_{1,2})}{(\epsilon_1 + \epsilon_2)}}$. Le calcul montre que les parties réelles de ces vecteurs d'onde sont positives garantissant une décroissance exponentielle des champs électrique et magnétique en s'éloignant de la surface du nanofil. On en déduit que le PPS existe, quelle que soit la valeur de la permittivité ϵ_1 et de la fréquence $\omega > 0$ [85 et 13]. Étant donné l'existence de PPS se propageant le long du nanofil pour toutes les fréquences, l'équation (3.39) et la figure 3.23 prouvent que la conductance thermique du PPS est quantifiée et vaut G_0 pour une large gamme de températures jusqu'à l'ambiante. Cette valeur coïncide avec celle obtenue pour les électrons

et les phonons sauf que dans le cas des PPS cette valeur ne tient pas seulement pour des températures extrêmement basses ($T < 1$ K) nécessaires pour des porteurs d'énergie comme les électrons ou les phonons, mais pour n'importe quelle température plus élevée. La contribution du PPS (G_0) à la conductance thermique quantifiée du nanofil peut être supérieure de deux ordres de grandeur à celle des phonons prise à des températures cryogéniques. Cette contribution phononique a déjà été mesurée expérimentalement avec une très grande précision [104]. Cette différence notable devrait faciliter l'observation du quantum de conductance à température ambiante.

3.5.4 Quantification du transfert de chaleur de nanofils de SiC et de SiO₂

La quantification de la conductance thermique est analysée dans le cas particulier de deux nanofils respectivement de SiC et de SiO₂ dans l'air ($\epsilon_2 = 1$). La relation de dispersion et la longueur de propagation en fonction de la fréquence sont présentées en figures 3.24 et 3.25 pour des PPS se propageant à l'interface nanofil/air. Les valeurs des constantes diélectriques utilisées pour ces deux matériaux sont les mêmes que celles utilisées dans les parties précédentes (2.2 et 3.2). Pour les deux matériaux β' diminue et se rapproche du cône de lumière quand la fréquence diminue, indiquant un comportement photonique des PPS. Par contre quand la fréquence augmente, la courbe de dispersion s'éloigne du cône de lumière et prend une tendance asymptotique (par exemple à $17,8 \cdot 10^{13}$ rad.s⁻¹ pour le SiC et à $21,5 \cdot 10^{13}$ rad.s⁻¹) caractéristique d'un comportement phononique. Ce comportement s'estompe rapidement pour des fréquences plus élevées où la courbe de dispersion reprend la forme d'une droite affine, suivant une nouvelle ligne de lumière d'un milieu d'indice supérieur à celui de l'air. Le PPS reprend alors un comportement photonique. Le parallèle entre le comportement photonique/phononique et l'amplitude de la longueur de propagation est assez frappant : plus la longueur de propagation est grande plus le mode correspondant est photonique, plus celle-ci est faible plus il est phononique. Les fréquences des *maxima* et des *minima* des longueurs de propagation coïncident aussi bien sûr aux fréquences pour lesquelles l'absorption est respectivement minimale et maximale. De plus on remarque que le PPS existe pour toutes les fréquences car les pertes diélectriques ne sont pas négligées ($\epsilon_1'' \neq 0$) même si l'absorption d'énergie est négligeable comme c'est le cas du SiC. La propagation du PPS existe, quelle que soit la position du vecteur d'onde par rapport au cône de lumière, comme l'avaient déjà mentionné Borstel et Falge [13]. Enfin pour s'assurer de la bonne transmission du PPS tout au long du nanofil, il faut que sa longueur soit du même ordre de grandeur ou plus petite que la longueur de propagation du PPS pouvant atteindre 1 cm (cf. figure 3.25).

Les parties réelles des vecteurs d'onde radiaux à l'intérieur et à l'extérieur du nanofil sont présentées en figure 3.26 : elles sont strictement positives pour tout l'intervalle de fréquences étudié, ce qui révèle que la propagation des PPS

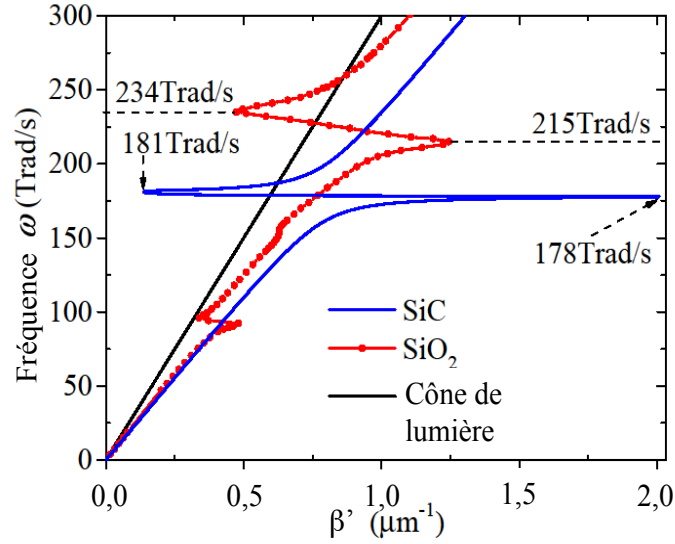


Figure 3.24 – Relation de dispersion du PPS pour des nanofils de SiC et de SiO₂ dans l'air ($\epsilon_2 = 1$).

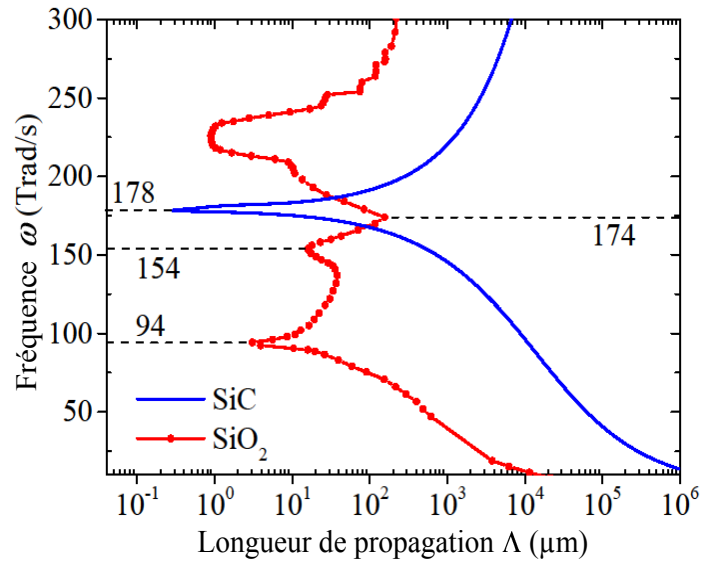


Figure 3.25 – Longueur de propagation de PPS en fonction de la fréquence pour des nanofils de SiC et de SiO₂ dans l'air ($\epsilon_2 = 1$).

commence à $\omega = 0$ et se poursuit dans une zone très large de fréquences. Ce point est d'ailleurs confirmé par la distribution du vecteur de Poynting représenté en figure 3.27 pour de faibles fréquences. Le flux d'énergie se propageant

à l'intérieur du fil est très petit par rapport à celui se propageant à l'extérieur. En effet l'air absorbe beaucoup moins l'énergie du PPS que le SiC ou le SiO₂. Comme l'énergie se concentre principalement à l'interface, même un nanofil très absorbant peut transmettre des PPS sur de longues distances. De plus le flux d'énergie augmente quand la fréquence diminue, indiquant que la plus grande contribution à la conductance thermique du PPS d'un nanofil provient des faibles fréquences.

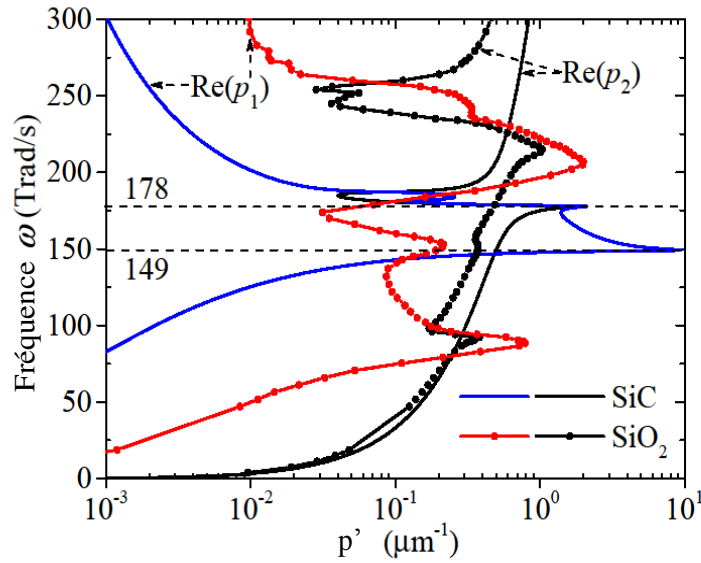


Figure 3.26 – Tracé de la partie réelle du vecteur d'onde transverse p' en fonction de la fréquence pour des nanofils de SiC et de SiO₂ dans l'air.

Étant donné l'existence (3.26) et la propagation (3.25) de PPS le long de l'interface nanofil/air, la figure 3.24 montre que la relation de dispersion décrivant la propagation de PPS contient une seule branche ($N = 1$) qui commence à la fréquence nulle (donc $A_1 = 0$). Les calculs ont été menés jusqu'à une fréquence de $30 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$, ce qui signifie que ω_1^{max} est supérieure à cette fréquence et donc que $B_1 = \frac{\hbar \omega_1^{max}}{k_B} > 2283 \text{ K}$. Suivant la figure 3.23, on en déduit que pour toute température égale ou inférieure à 300 K ($T/B_1 \rightarrow 0$), la conductance thermique du PPS d'un nanofil de SiC ou de SiO₂ est quantifiée par G_0 . De manière générale cette quantification vaut pour tout nanofil polaire absorbant. Ce n'est pas le cas de matériaux idéaux pour lesquels on néglige les pertes diélectriques ($\epsilon_1'' = 0$) et où le PPS n'existe que sous la forme de modes de *Fano* [2 et 121] et plus sous ceux de *Zenneck-Sommerfeld*. Les modes de *Fano* du PPS correspondent à l'intervalle de fréquences très restreint pour lequel on a $\epsilon_1 < -\epsilon_2$.

Cette étude permet de compléter la discussion dans les parties 2.2.1 et 2.2.2 sur les conditions d'existence du PPS dans des matériaux à faibles pertes diélec-

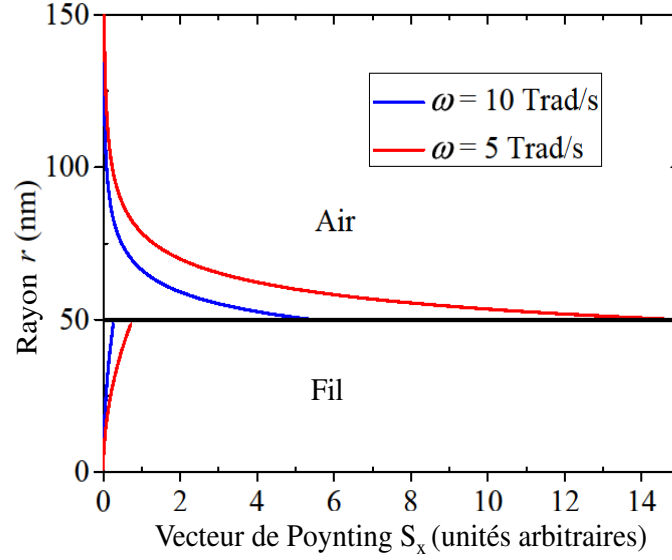


Figure 3.27 – Tracé du vecteur de Poynting pour un nanofil de SiC de rayon $a = 50$ nm selon l'axe radial.

triques. Dans le cas d'une interface plane SiC/air, nous avons vu que le PPS ne se propageait que pour des fréquences pour lesquelles $\epsilon_{\text{SiC}} < -1$, ce qui est faux en toute rigueur (les composantes transverses du vecteur d'onde du PPS sont strictement positives pour toutes les fréquences). Cependant la longueur de propagation du PPS est très faible pour toutes les fréquences (inférieure ou de l'ordre de la longueur d'onde) mais surtout la composante transverse du vecteur d'onde est si faible qu'il est difficile de parler d'onde confinée en surface. Pourtant ce confinement dépend de la géométrie et dans le cas d'un nanofil de SiC cette notion a beaucoup plus de sens, comme en témoigne le tracé du vecteur de Poynting à basse fréquence en figure 3.27. L'élargissement spectral du PPS n'est donc pas que l'apanage des matériaux à fortes pertes diélectriques mais de tout matériau absorbant et cet effet sera d'autant plus important que la structure considérée aura au moins une dimension nanométrique.

La figure 3.28 montre la conductance thermique totale ainsi que la contribution des phonons et des PPS à celle-ci pour un nanofil de SiC en fonction de la température. La composante phononique présente un comportement linéaire à basse température avant de devenir constante à plus haute température en accord avec la figure 3.23. Néanmoins la composante due aux PPS est du même ordre de grandeur que celle phononique à température ambiante avant de la dépasser pour de plus hautes températures. Cela prouve que les PPS peuvent transporter plus de chaleur que les phonons.

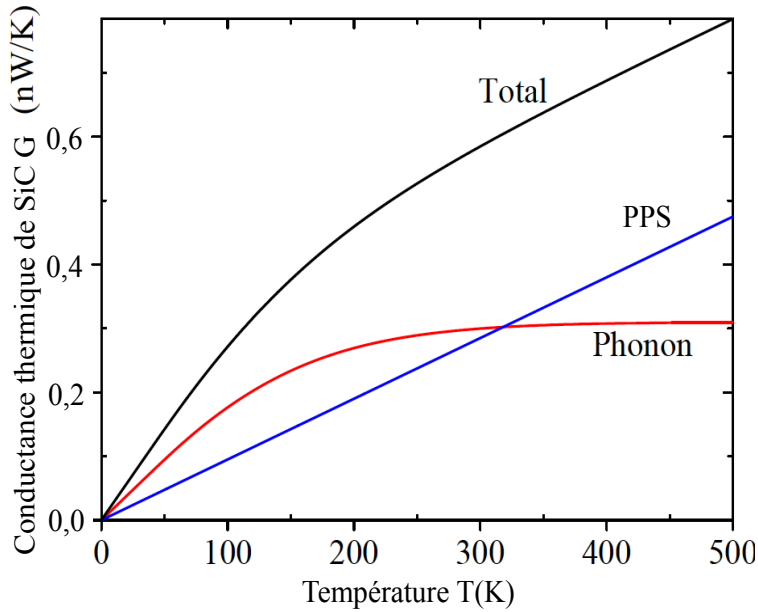


Figure 3.28 – Tracé des contributions des phonons et des PPS à la conductance thermique d'un nanofil de SiC, dont la géométrie est définie en figure 3.22, en fonction de la température.

À l'aide des équations de Maxwell et de l'équation de transport de Boltzmann, la conductivité thermique due aux PPS a pu être calculée pour une couche mince ainsi qu'un tube de verre. Trois remarques importantes ressortent de cette étude :

- La forme et la taille jouent un rôle déterminant dans la propagation des PPS. Nous avons montré que leur description pouvait être faite analytiquement en considérant des structures suffisamment petites comme l'épaisseur du film ou le rayon extérieur du tube égal ou inférieur à 300 nm.
- Une faible différence entre les permittivités des milieux environnant une couche mince produit une remarquable augmentation des longueurs de propagation, induisant à une forte augmentation de la conductivité thermique.
- La conductivité thermique due aux PPS augmente quand l'épaisseur du film diminue de sorte qu'à l'échelle nanométrique elle est prépondérante devant la conductivité thermique phononique alors qu'à l'échelle micrométrique elle devient négligeable.

Néanmoins la couche mince est plus propice à l'obtention de grandes conductivités thermiques que le tube. En effet une couche mince d'épaisseur 30 nm atteint une conductivité thermique due aux PPS de $2,5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ à température ambiante qui est 1,8 fois plus grande que celle due aux phonons, tandis qu'un nanotube de rapport rayon intérieur sur rayon extérieur de 0,9 n'atteint

qu'une valeur de $1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour la contribution des PPS.

Cet effet de résonance de PPS exacerbé pour des structures de verre est causé par l'élargissement spectral de ces ondes de surface. Cet élargissement est aussi à l'origine de l'émergence d'un quantum universel de conductance thermique égal à $\frac{\pi^2 k_B^2 T}{3h}$ pour des PPS se déplaçant à la surface de nanofils polaires. Cet effet de quantification de la chaleur transportée n'a pas seulement lieu à des températures inférieures à 1 K comme pour les électrons et les phonons, mais aussi pour des valeurs proches de la température ambiante. Cela est possible grâce aux PPS se propageant sur de très longues distances à faibles fréquences. Toutes ces études donnent de nouvelles idées pour améliorer les performances thermiques de nanomatériaux grâce aux polaritons de surface.

L'étude théorique de la propagation du PPS nous a ainsi permis de confirmer l'intérêt des nanotubes de verre comme de possibles guides d'onde de chaleur, même si ce n'est pas la géométrie qui offre les longueurs de propagation maximales. La suite de ce travail de thèse va donc s'attacher à montrer la mise en place expérimentale ainsi que la démonstration de la présence de PPS stimulés thermiquement dans des nanotubes de verre.

Partie II

Étude expérimentale

Chapitre 4

Détection expérimentale du PPS

Ce chapitre expose la problématique générale de la détection expérimentale du PPS. Différentes méthodes connues et encore largement utilisées aujourd'hui pour mesurer le PPS sont examinées : la réflexion totale atténuée, la microscopie optique de champ proche et le couplage en champ lointain par microstructuration de surface. Néanmoins ce panorama n'est pas exhaustif, d'autres méthodes existantes étudiées antérieurement ne sont pas présentées, comme la diffusion Raman [36], la diffraction électronique inélastique [53 et 54] ou le mélange optique non linéaire de deux faisceaux laser [29]. Cette revue nous a permis d'aboutir à une nouvelle méthode de mesure de la diffraction du PPS dont nous avons validé le principe par simulation numérique. Un montage expérimental pour conforter ces résultats est expliqué à la fin du chapitre.

4.1 Démonstration expérimentale du PPS

La difficulté à observer expérimentalement les PPS provient du caractère non radiatif de cette onde. En effet un mode de surface entre deux milieux 1 et 2 ne se couple pas à une onde électromagnétique propagative incidente depuis le milieu 1 car il ne peut pas satisfaire aux lois de conservation d'énergie et de moment :

$$\hbar\Psi = \hbar\omega, \tag{4.1}$$

$$B = \beta, \tag{4.2}$$

Ψ et ω étant respectivement les fréquences de l'onde électromagnétique propagative et du mode de surface, et B et β les vecteurs d'onde longitudinaux de l'onde électromagnétique incidente et du mode de surface. Ces deux équations ne peuvent pas être satisfaites simultanément. En effet la fréquence de l'onde

se propageant dans le milieu 1 (en supposant qu'elle ne se propage pas selon $\mathbf{y}$) s'écrit :

$$\Psi = \frac{c}{\sqrt{\epsilon_1}} \sqrt{B^2 + p_1^2}. \quad (4.3)$$

Si le mode de surface vérifiait les équations (4.1) et (4.2), alors sa fréquence s'exprimerait selon l'expression suivante [2] :

$$\omega = \frac{c}{\sqrt{\epsilon_1}} \sqrt{\beta^2 + p_1^2}. \quad (4.4)$$

Cependant nous avons vu dans les chapitres 2 et 3 que les modes de surface se situaient principalement sous le cône de lumière, ce qui signifie que :

$$\omega < \frac{c}{\sqrt{\epsilon_1}} \beta. \quad (4.5)$$

L'équation (4.4) ne peut être vérifiée que si $p_1^2 < 0$, le vecteur d'onde transverse de l'onde électromagnétique propagative est donc imaginaire, ce qui induit une décroissance exponentielle dans cette direction et aboutit à une contradiction : l'onde incidente excitatrice ne peut pas se propager jusqu'à la surface. Ceci caractérise le champ proche comme étant le lieu des ondes évanescentes confinées en surface qui ne peuvent pas être observées telles quelles en champ lointain. Cependant il existe des solutions pour satisfaire les lois de conservation (4.1) et (4.2) qui ont permis de prouver l'existence de telles ondes de surface et de pouvoir étudier leur propagation comme celles présentées par la suite.

4.1.1 La réflexion totale atténuée

Lorsqu'une onde incidente atteint une interface où un PPS peut exister, la composante de son vecteur d'onde selon l'interface est $\beta = \frac{\omega\sqrt{\epsilon_1}}{c} \sin(\phi)$ avec ϕ l'angle d'incidence que fait l'onde par rapport à la normale à l'interface (voir la figure 4.1). On remarque alors que le cône de lumière correspond au cas extrême d'une incidence rasante $\phi = \frac{\pi}{2}$. Ainsi quel que soit l'angle, l'onde incidente ne pourra pas se coupler au PPS sauf si on augmente son vecteur d'onde longitudinal β , ce qui est le principe de la réflexion totale atténuée. Cette augmentation a lieu si l'onde se propage dans un milieu 3 (un prisme) d'indice supérieur au milieu 1 (de l'air), le cône de lumière dans ce nouveau milieu sera alors défini par $\beta = \frac{\omega\sqrt{\epsilon_3}}{c}$. Il sera donc possible d'exciter les modes de surface de vecteur d'onde longitudinal β_{PPS} tel que $\frac{\omega\sqrt{\epsilon_1}}{c} < \beta_{PPS} < \frac{\omega\sqrt{\epsilon_3}}{c}$ comme l'illustre la figure 4.2. L'idée est d'envoyer dans le prisme un rayonnement incident qui va exciter des modes de surface à l'interface prisme/air dont le vecteur d'onde β est supérieur à $\frac{\omega\sqrt{\epsilon_1}}{c}$. Ces résonances vont ensuite pouvoir exciter les modes de surface (les PPS) à l'interface air/milieu dispersif (milieu 2). Des ondes évanescentes sont ainsi créées pour exciter d'autres ondes évanescentes, et pour

y parvenir, la réflexion totale est utilisée. En effet pour un angle d'incidence ϕ tel que $\arcsin(\frac{n_3}{n_1}) < \phi < \frac{\pi}{2}$, la réflexion de l'onde incidente à l'interface entre le prisme et l'air est totale. Toute l'énergie est réfléchiée mais une onde évanescente est créée au niveau de cette interface dans l'air. Cette onde évanescente ne pourra transmettre une partie de l'énergie de l'onde incidente au PPS que dans le cas où elle se couple avec lui. Le couplage n'est possible que si la distance de séparation d n'est pas trop grande pour que l'onde évanescente à la surface du prisme puisse atteindre la surface du milieu dispersif et que les conditions (4.1) et (4.2) soient satisfaites. En pratique cela signifie que pour un angle ϕ le PPS, pour une fréquence ω de l'onde incidente, ne sera excité que si la relation $\beta_{PPS} = \frac{\omega\sqrt{\epsilon_3}}{c}\sin(\phi)$ est vérifiée. En cas d'excitation, une partie de l'énergie de l'onde incidente sera absorbée par l'onde de surface, ce qui se traduira par une diminution de l'amplitude de l'onde incidente réfléchiée. Les spectres de réflexion de l'onde incidente vont prouver l'excitation de PPS par l'apparition de minima pour un angle et une fréquence donnés.

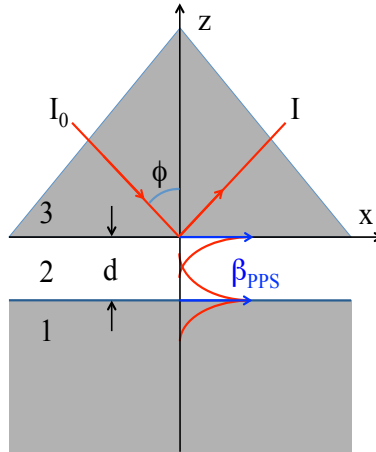


Figure 4.1 – Schéma expérimental de la détection de modes de surface par réflexion totale atténuée. Le milieu 3 est le prisme, le milieu 1, de l'air (ou du vide ou tout autre milieu non dispersif) et le milieu 2 est un milieu polaire dispersif supportant des PPS. En définitive le signal mesuré est la réflectivité en fonction de la fréquence $R(\omega) = \frac{I(\omega)}{I_0(\omega)}$ ou en fonction de l'angle d'incidence $R(\phi) = \frac{I(\phi)}{I_0(\phi)}$.

A priori il semble à ce niveau qu'il serait équivalent de faire varier l'angle d'incidence d'une onde de fréquence fixée ou d'envoyer une onde de fréquence réglable à un même angle d'incidence pour exciter un PPS. Or il n'en est rien pour des matériaux à pertes diélectriques (matériaux réels) comme le montrent les figures 4.2 et 4.3. Plus précisément cela correspond aux modifications de la

relation de dispersion du PPS suivant que le vecteur d'onde β est complexe ou que la fréquence ω est complexe. En travaillant à un angle ϕ constant et en modifiant la fréquence de l'onde incidente, le minimum de réflexion est mesuré pour un angle correspondant à la partie réelle de β et une fréquence correspondant à la partie réelle de ω , tandis que la largeur du minimum mesuré est reliée à la partie imaginaire de ω . Dans ce cas la courbe de dispersion obtenue a la convention vecteur d'onde réel-fréquence complexe. Au contraire si la fréquence est fixée et que l'on fait varier l'angle d'incidence, il est alors possible de mesurer le repliement de la courbe de dispersion due à la convention vecteur d'onde complexe-fréquence réelle. Dans ce cas la largeur du minimum est liée à la partie imaginaire du vecteur d'onde.

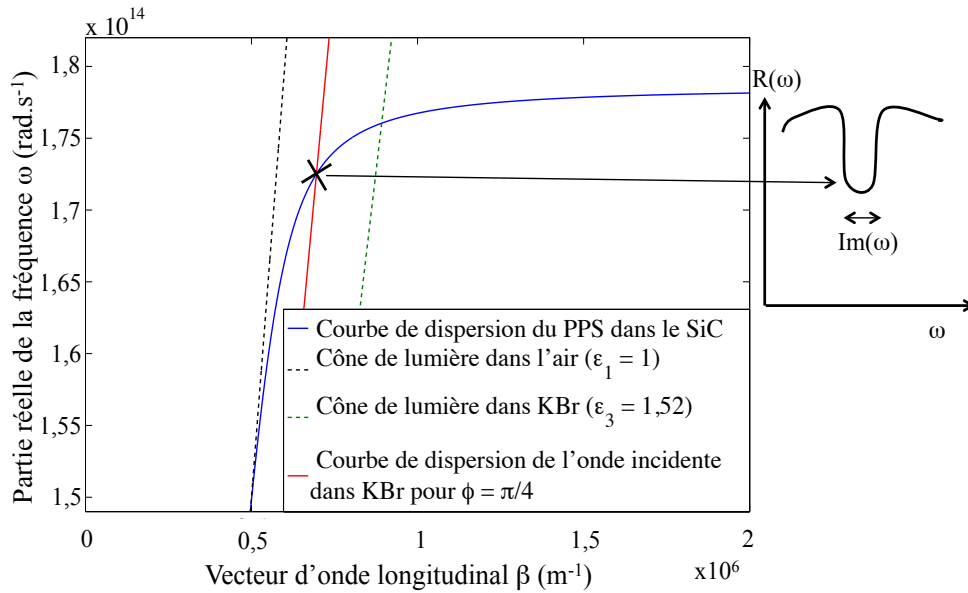


Figure 4.2 – Courbes de dispersion correspondant à une expérience simulée théoriquement de réflexion totale atténuée où le prisme est en KBr et le milieu dispersif est SiC. KBr et SiC sont séparés par de l'air. Ici la mesure est réalisée avec une source à fréquence réglable pour un angle d'incidence fixe. L'absorption de la lumière incidente apparaît à l'intersection des courbes de dispersion du PPS et de l'onde incidente dans KBr. La largeur de cette absorption fournit le temps de vie du PPS ($\text{Im}(\omega)$). L'allure de la courbe de réflectivité $R(\omega)$ est présentée à droite de la courbe de dispersion, le minimum de réflexion correspond au couplage radiatif du PPS.

La réflexion totale atténuée pour des milieux absorbants est connue depuis la fin des années 60 grâce aux travaux d'Otto [90] : de plus amples détails sont donnés

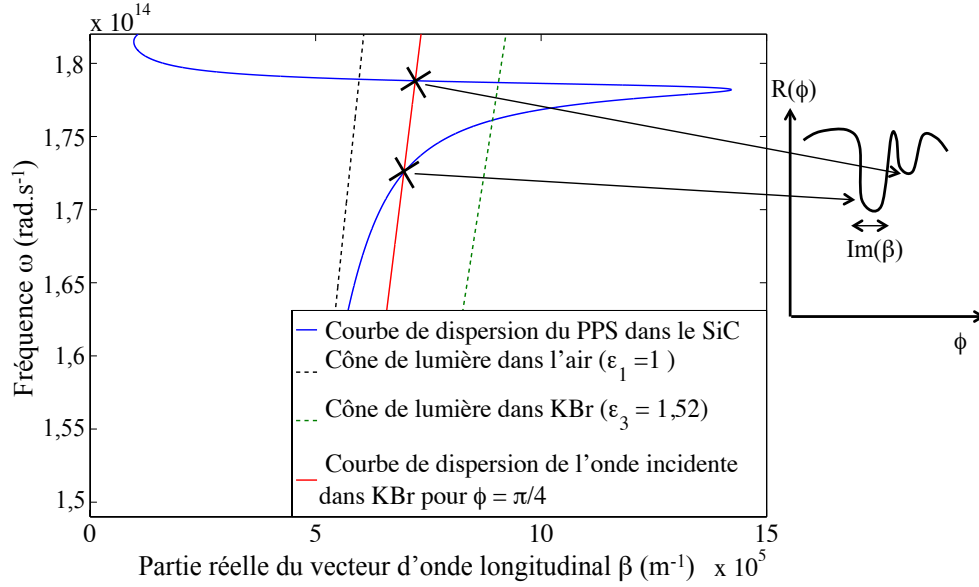


Figure 4.3 – Courbes de dispersion correspondant à une expérience simulée théoriquement de réflexion totale atténuée où le prisme est en KBr et le milieu dispersif est SiC. KBr et SiC sont séparés par de l'air. Ici la mesure est réalisée avec une source monochromatique dont on fait varier l'angle d'incidence. L'absorption de la lumière incidente apparaît aux intersections des courbes de dispersion du PPS et de l'onde incidente dans KBr. La largeur de cette absorption fournit la longueur de propagation du PPS ($\text{Im}(\beta)$). L'allure de la courbe de réflectivité $R(\phi)$ est présentée à droite de la courbe de dispersion où on observe une diminution de la réflexion pour deux angles d'incidence correspondant aux deux points de couplage radiatif du PPS.

par Halevi [45], Kliwer et Fuchs [64] et plus généralement par Agranovich *et al.* [2]. Il faut aussi noter que la réflexion totale atténuée peut être utilisée à l'inverse pour l'émission de modes de surface non radiatifs *via* les mêmes mécanismes comme le mentionnent Agranovich *et al.* [2].

4.1.2 La microscopie optique de champ proche

La deuxième méthode d'observation possible du PPS fait intervenir un microscope à force atomique dont l'utilisation est légèrement détournée. Le principe général de la mesure réside dans la diffraction du rayonnement de champ proche par un dipôle approché très près de la surface où se propage le PPS (voir la figure 4.4). L'onde de surface va exciter le dipôle qui va émettre en retour une onde électromagnétique propagative proportionnelle à cette onde de surface

[50]. En pratique ce dipôle est la pointe d'un microscope à force atomique qui est utilisé en mode « à chocs » (*tapping mode*) c'est-à-dire que cette pointe oscille au-dessus la surface en étant en contact périodiquement avec celle-ci. La pointe a un rayon typiquement de l'ordre de 20 à 30 nm, elle est composée d'un matériau très conducteur comme par exemple le tungstène [31 et 50]. L'amplitude des oscillations de la pointe Δz sera de l'ordre de son rayon a mais très inférieure à λ , la longueur d'onde de l'onde de surface. Il s'agit alors de microscopie optique de champ proche par diffusion.

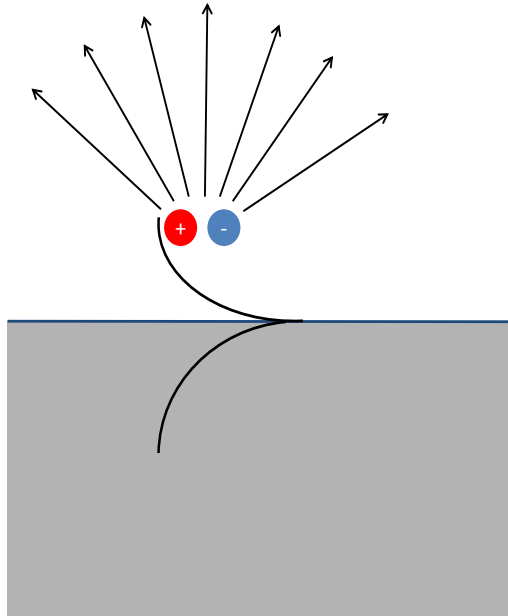


Figure 4.4 – *Principe de la microscopie optique de champ proche : diffraction du rayonnement de champ proche en champ lointain par un dipôle.*

Le PPS peut être ainsi mesuré soit à température ambiante en envoyant une onde de référence sur la pointe du microscope à force atomique, soit en chauffant la surface du matériau sondé (voir figures 4.5 et 4.6). Le PPS est donc excité soit optiquement, soit thermiquement. Dans le cas de l'excitation optique, nous allons prendre l'exemple de l'expérience de Huber *et al.* où un faisceau laser est envoyé sur les bords d'une couche mince métallique déposée sur le substrat en matériau polaire diélectrique (l'échantillon utilisé dans l'expérience est un substrat de SiC recouvert partiellement d'or) [50 et 49]. L'excitation du PPS est réalisée par la diffraction de l'onde laser sur les bords de la couche mince. Ainsi la composante longitudinale du champ incident aux bords de la couche

mince d'or s'écrit :

$$E_0 = E_i e^{-ik \cos(\alpha) x} \quad (4.6)$$

avec E_i l'amplitude du champ incident, k le module du vecteur d'onde de l'onde incidente atteignant la surface avec un angle α . Le champ du PPS diffracté peut être relié à E_0 par la formule :

$$E_{PPS} = f_0 e^{i(\beta x + \phi_0) - p|z|} E_0 \quad (4.7)$$

avec f_0 le rapport de l'amplitude du champ proche à la surface sous la pointe sur l'amplitude du champ incident ($f_0 = \frac{E_{PPS}(x=0, z=0)}{E_i}$), ϕ_0 la phase d'excitation à l'origine, β et p les composantes longitudinale et transverse du vecteur d'onde du champ proche. Le faisceau laser illuminant la couche mince est suffisamment large pour illuminer aussi la pointe (voir la figure 4.5), de sorte que le champ électrique à ce niveau s'écrit comme la somme du champ incident et du champ proche s'étant propagé depuis le métal, tel que [50] :

$$E_{pointe}(x, z) = [1 + f_0 e^{-ik \cos(\alpha) x} e^{i(\beta x + \phi_0) - p|z|}] E_i. \quad (4.8)$$

Le champ réémis par la pointe s'écrit alors sous la forme :

$$E = \alpha_{eff}(z) E_{pointe} \quad (4.9)$$

où α_{eff} est la polarisabilité effective décrivant le couplage de champ proche entre la pointe et la surface de l'échantillon. Le problème est que le détecteur ne mesure pas uniquement le champ émis par le bout de la pointe mais aussi celui du reste de la tige ainsi que le bruit de fond en général, dont l'amplitude totale sera très forte en comparaison de la contribution de la pointe. De plus la rugosité de la surface peut ajouter des difficultés pour mesurer directement le champ proche, si bien que la détection synchrone est régulièrement utilisée à des harmoniques plus élevées nF où F est la fréquence d'oscillation de la pointe. En effet la détection synchrone utilisée à F ne suffit généralement pas pour éliminer le bruit de fond. L'utilisation des harmoniques tire profit de la non-linéarité de la polarisabilité effective α_{eff} en fonction de z , ce qui induit une modulation très forte du champ proche par rapport au bruit de fond pour des modulations à nF [61]. L'excitation optique permet de mesurer la relation de dispersion du PPS expérimentalement car l'excitation est monochromatique grâce au laser contrairement au chauffage. Cependant cette mesure se fera sur une bande spectrale très réduite à cause de la difficulté à modifier la longueur d'onde de fonctionnement du laser. En revanche le déplacement de la pointe offre aussi la possibilité de mesurer la longueur de propagation *in situ* [50].

En cas d'excitation thermique du PPS, l'onde de référence n'est pas utilisée et le système est plutôt nommé « microscope à effet tunnel de rayonnement thermique » [31]. Le signal mesuré par la pointe sera relié à la densité locale d'états électromagnétiques (LDOS) [58]. Comme toutes les fréquences du PPS sont excitées en même temps, il faudra filtrer le signal diffracté pour obtenir des informations spectrales de la LDOS [31].

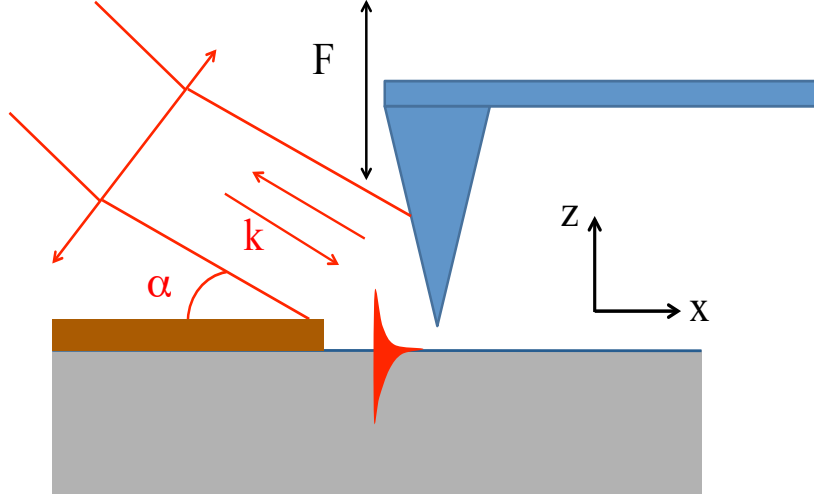


Figure 4.5 – Microscopie optique de champ proche par diffusion : la pointe diffracte le champ proche et réfléchit le champ incident qu'elle reçoit. L'interférence entre les deux ondes émises par la pointe permet de mesurer le PPS à température ambiante. Le champ proche est excité optiquement par la diffraction du rayonnement incident sur les bords d'une couche mince métallique déposée sur le substrat diélectrique.

4.1.3 La microstructuration de surface

Une troisième méthode est possible pour l'observation de PPS en champ lointain : le couplage à un réseau de surface. En créant une périodicité à l'interface, les modes de surface suivent le théorème de Bloch. Les vecteurs d'onde de ces modes sont périodiques de période $\frac{2\pi}{\Lambda}$, avec Λ la période du réseau dans ce contexte, c'est-à-dire que les vecteurs d'onde sont égaux modulo 2π autorisant alors l'onde de surface à vérifier les conditions (4.1) et (4.2), ce qui peut s'exprimer sous la forme :

$$\beta_{PPS} = B + p \frac{2\pi}{\Lambda} \quad (4.10)$$

Cette équation montre qu'il peut y avoir couplage entre un mode de surface et un mode propagatif, soit sous la forme d'absorption résonante [52 et 92] soit sous la forme d'émission thermique [123 et 65] (voir figure 4.7). Dans le cas d'une absorption résonante, cela correspond au couplage d'une onde propagative incidente avec l'onde de surface. En reprenant la formule des réseaux :

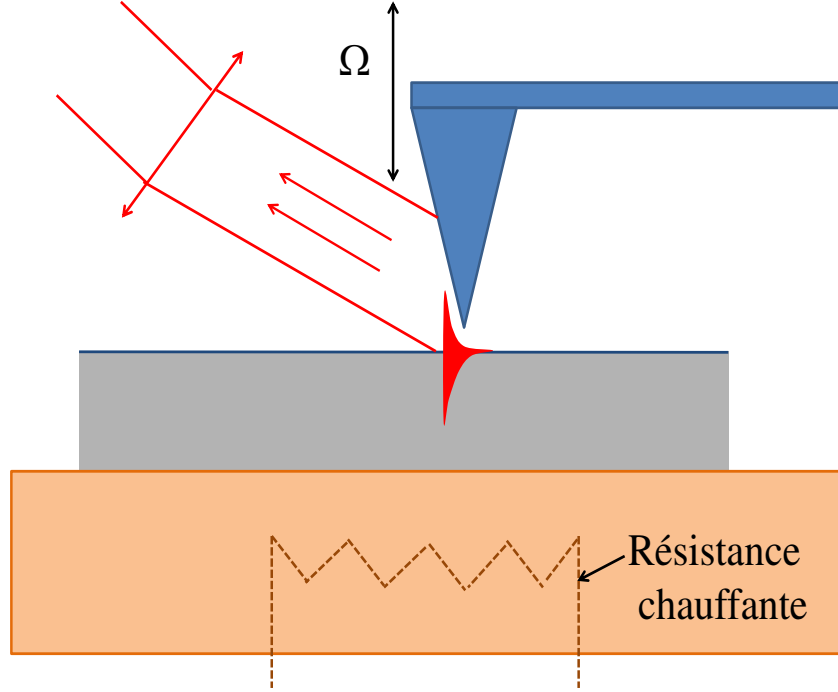


Figure 4.6 – Microscope à effet tunnel de rayonnement thermique : la pointe diffracte le champ proche stimulé thermiquement. Toutes les fréquences du PPS sont excitées, la mesure permet d’accéder à la densité locale d’états électromagnétiques.

$$\frac{\omega}{c}\sin(\theta_d) = \frac{\omega}{c}\sin(\theta_i) + p\frac{2\pi}{\Lambda} \quad (4.11)$$

qui relie la direction de diffraction θ_d d’une onde incidente arrivant sur un réseau de pas Λ avec un angle d’incidence θ_i , le cas d’une onde de surface fournit $\sin(\theta_d) > 1$. L’onde incidente n’est donc pas diffractée mais absorbée par le réseau (anomalie de Wood) pour une fréquence et un angle vérifiant :

$$\frac{\omega}{c}\sin(\theta_i) = \beta_{\text{PPS}} - p\frac{2\pi}{\Lambda} \quad (4.12)$$

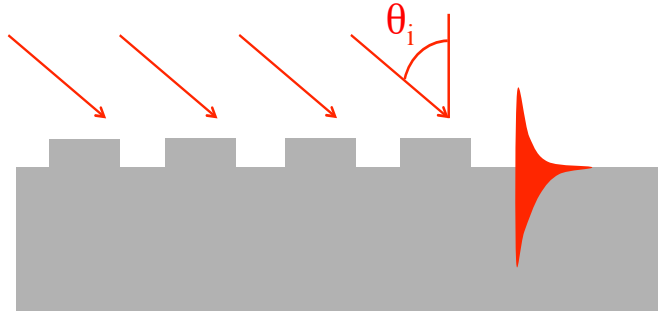
À l’inverse pour une fréquence donnée de l’onde de surface, il existe un angle d’émission θ_e et un ordre de diffraction q tels que :

$$\frac{\omega}{c}\sin(\theta_e) = \beta_{\text{PPS}} + q\frac{2\pi}{\Lambda} \quad (4.13)$$

Ainsi en chauffant un matériau qui contient un réseau de surface dont le pas est proche de la longueur d’onde du PPS, l’émission thermique du PPS diffracté

par le réseau peut être mesurée. Cette méthode a été utilisée pour l'étude de la propagation de PPS le long de la surface de SiC par Le Gall *et al.*, Marquier *et al.* [42, 75 et 74] mais aussi pour d'autres matériaux comme le verre [28].

(a) Absorption résonante d'une onde incidente par un PPS



(b) Émission thermique cohérente d'un PPS

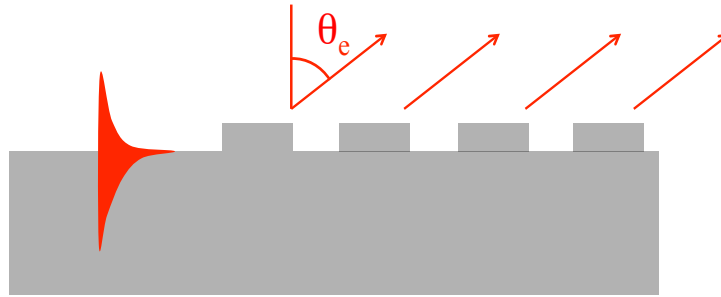


Figure 4.7 – Schéma d'un réseau illustrant l'absorption résonante d'une onde incidente par des modes de surface (a) et l'émission cohérente d'ondes de surface stimulées thermiquement (b).

Comme nous allons le voir, le couplage radiatif des ondes de surface par le réseau peut être facilement expliqué en traçant les courbes de dispersion. Cependant il est nécessaire de faire d'abord l'hypothèse que la relation de dispersion pour une surface plane est la même que celle avec un réseau à des translations de $\frac{\pi}{\lambda}$ près. Cette hypothèse est vérifiée lorsque les dimensions caractéristiques du réseau, autres que la période, sont très inférieures à la longueur d'onde [74]. L'application du théorème de Bloch pour le PPS se propageant dans un réseau, implique d'une part que la courbe de dispersion soit entièrement décrite pour des vecteurs d'onde compris entre 0 et $\frac{\pi}{\Lambda}$ et d'autre part que l'on observe un repliement de la relation de dispersion du PPS (voir figures 4.8 et 4.9). Lorsque le repliement traverse le cône de lumière, le couplage radiatif du PPS devient possible. La période du réseau utilisée déterminera les modes du PPS disponibles à la diffraction : en effet il est possible de concevoir une source IR monochromatique qui émet dans toutes les directions ou au contraire d'avoir une source polychromatique très directionnelle où chaque longueur d'onde émise

sera associée à un angle d'observation (voir figures 4.8 et 4.9) [75].

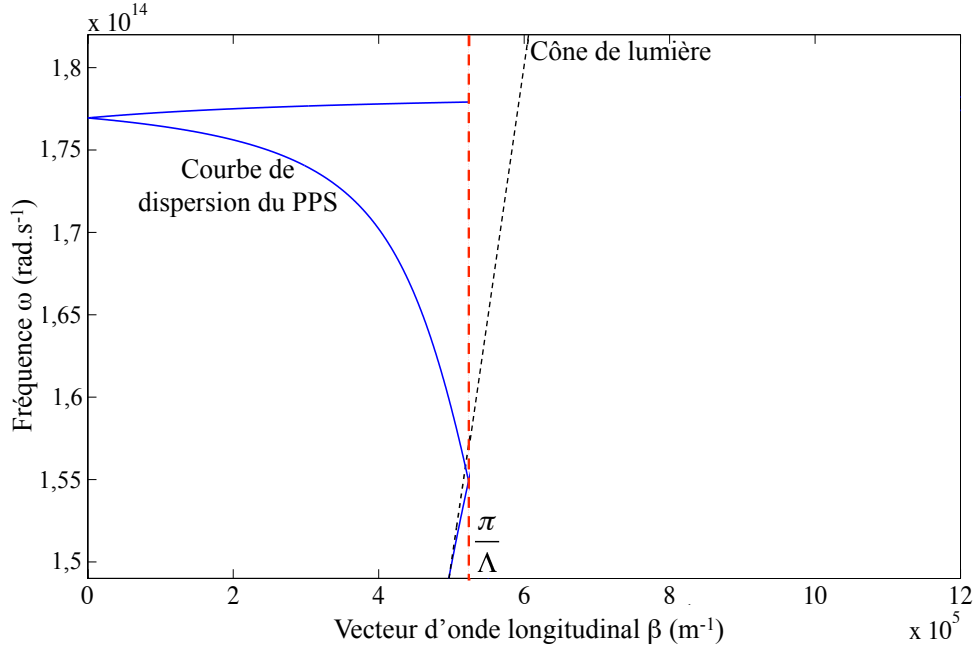


Figure 4.8 – Tracé de la relation de dispersion du PPS se propageant à la surface d'un réseau de SiC de période $6 \mu\text{m}$. Le couplage radiatif a lieu pour tous les modes de PPS dont le vecteur d'onde est inférieur à $\frac{\omega}{c}$ représenté par le cône de lumière. Ici on voit que le PPS peut être diffracté pour des fréquences comprises entre $15,6 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ et $17,8 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ (entre $10,6$ et $12,1 \mu\text{m}$). L'émission de chaque fréquence a lieu pour des angles d'observation θ donnés par leur vecteur d'onde $\beta = \frac{\omega}{c} \sin(\theta)$.

4.1.4 Diffraction par la pointe d'un tube

Les deux précédentes méthodes d'observation du PPS (microscopie optique de champ proche et couplage radiatif par microstructuration de surface) s'appuient sur la diffraction des ondes de surface. Ce phénomène permet de coupler deux modes (propagatif et évanescent) en satisfaisant l'égalité de leurs moments (4.2) irréalisable en optique en espace libre. Revenons brièvement à l'origine de la diffraction : elle provient d'une modification de la propagation de la lumière quand celle-ci rencontre un obstacle ou une ouverture dont la taille est de l'ordre de la longueur d'onde ou inférieure à celle-ci. Dans le cas d'ondes de surface, les obstacles peuvent être tout simplement formés par les rugosités. Le couplage entre ondes de surface et rugosités a été étudié théoriquement par Maradudin et Mills [72]. Ce phénomène peut être mis en évidence expérimentalement en mesurant la réflexion d'une surface métallique lisse puis rugueuse [7]. La réflexion

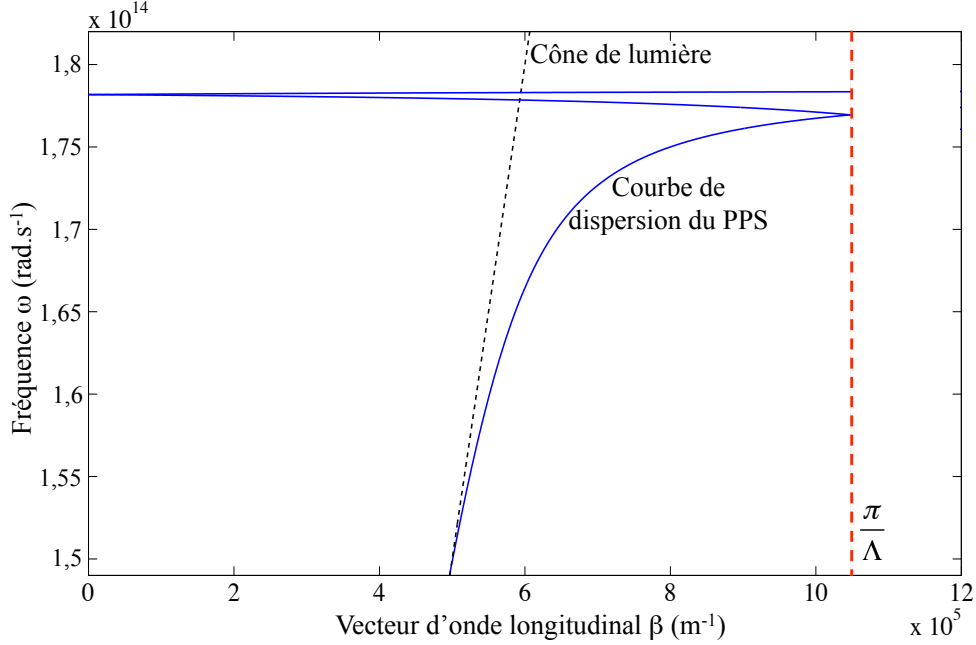


Figure 4.9 – Tracé de la relation de dispersion du PPS se propageant à la surface d'un réseau de SiC de période $3 \mu\text{m}$. Dans ce cas le PPS ne peut être diffracté uniquement pour une fréquence de $17,8 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ ($10,6 \mu\text{m}$). L'émission à cette fréquence est isotrope, en effet le repliement de la courbe de dispersion a lieu dans la partie plate. Tous les vecteurs d'onde pour lesquels a lieu un couplage radiatif des modes de surface correspondent à la même fréquence.

est spéculaire pour une surface lisse alors qu'elle devient en plus partiellement diffuse en présence de rugosités. Cette diffusion est une signature de la diffraction de l'onde incidente à l'interface, mais un deuxième effet apparaît pour une gamme de longueur d'onde bien précise : l'absorption de l'onde incidente par des modes de surface. Beaglehole et Hunderi ont mesuré une forte variation de la réflectivité d'une surface métallique rugueuse pour des longueurs d'onde proches de celles du plasmon de surface [7]. Ils ont ainsi pu démontrer que la rugosité de surface permettait l'absorption résonante d'une onde incidente par des plasmons de surface.

Cependant à l'inverse, la diffraction par une surface rugueuse de polaritons de surface stimulés thermiquement ne fonctionnera pas pour une rugosité aléatoire. En effet la diffraction est dans ce cas incohérente : les interférences des champs diffractés en champ lointain ne sont pas constructives. C'est pourquoi la structure de réseau périodique a été proposée pour rendre l'émission cohérente et observer la diffraction de polaritons de surface en champ lointain. Pourtant en isolant un seul objet diffractant, l'émission de celui-ci serait cohérente, en

supposant que sa taille soit inférieure à la longueur de cohérence spatiale, et permettrait de visualiser la diffraction de polaritons de surface pour toutes les longueurs d'onde en même temps. L'objectif de l'expérience est de montrer la diffraction de PPS stimulés thermiquement par un seul objet diffractant : la pointe d'un tube de verre dont le diamètre sera de l'ordre d'un micron. Le PPS est excité tout au long du microtube dont la base est chauffée. Le principe de l'expérience est schématisé en figure 4.10. Cette étude reste néanmoins à confirmer par des simulations numériques avant d'être vérifiée par l'expérience. En outre l'étude théorique permet de prédire l'angle d'émission principal et si l'émission est large ou étroite. Cependant comme la source excitatrice (chauffage) est incohérente, la question de la cohérence du PPS n'est pas abordée dans ces simulations.

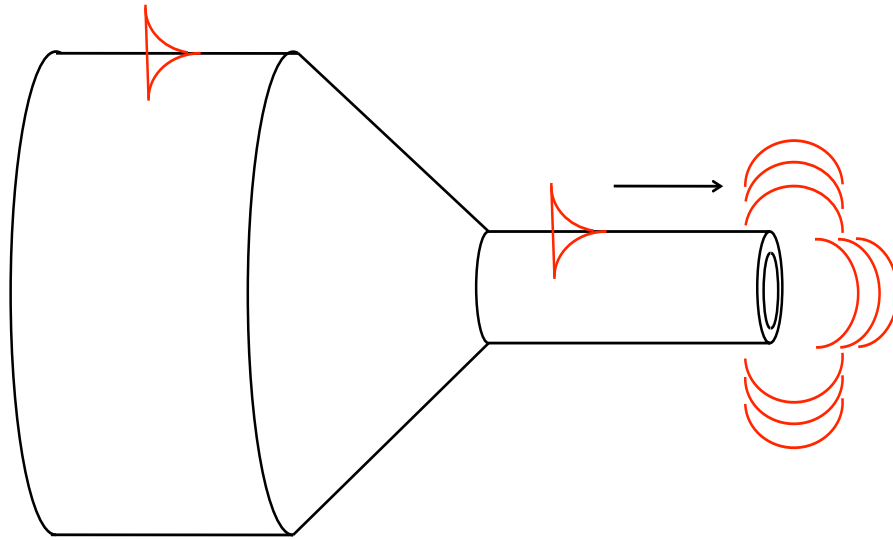


Figure 4.10 – Schéma de la diffraction du PPS à la pointe d'un microtube de verre. La base du tube de rayon millimétrique est chauffée, les PPS sont excités tout au long de la structure jusqu'à la pointe de rayon micrométrique.

4.2 Simulations FDTD

La diffraction du PPS à la pointe d'un tube de verre a été simulée par la méthode des différences finies dans le domaine temporel (FDTD) *via* le logiciel libre Meep développé par le MIT (Meep signifie MIT Electromagnetic Equation

Propagation). Le principe de la méthode FDTD repose sur une discrétisation spatiale et temporelle des champs électrique et magnétique dont la propagation est calculée grâce aux équations de Maxwell pour chaque pas de temps à chaque point du maillage dans l'espace. Nos simulations ont été réalisées en deux dimensions pour un domaine de calcul de $310 \mu\text{m}$ de longueur pour $160 \mu\text{m}$ de large, pour une durée de propagation égale à 69 périodes T (voir les figures 4.11 et 4.12 présentant des exemples de couche mince et de tube simulés dans le domaine de calcul). La période T correspond à la fréquence centrale de l'excitation monochromatique utilisée pour exciter le PPS de la structure. La taille du domaine a été choisie, d'une part pour se rapprocher de l'approximation de champ lointain en longueur, et d'autre part pour visualiser l'extension transverse du PPS en largeur et éviter que ces ondes ne se fassent absorber par les couches limites assurant les conditions de bord de la zone de calcul. La durée de propagation a été choisie pour s'assurer que le PPS diffracté atteigne la limite du domaine étudié et que l'on puisse considérer qu'il appartient au champ lointain. En effet cette durée n'est pas évidente à déterminer car les modes proches de la résonance vont avoir une vitesse de groupe qui diminue et donc bien inférieure à la vitesse de la lumière.

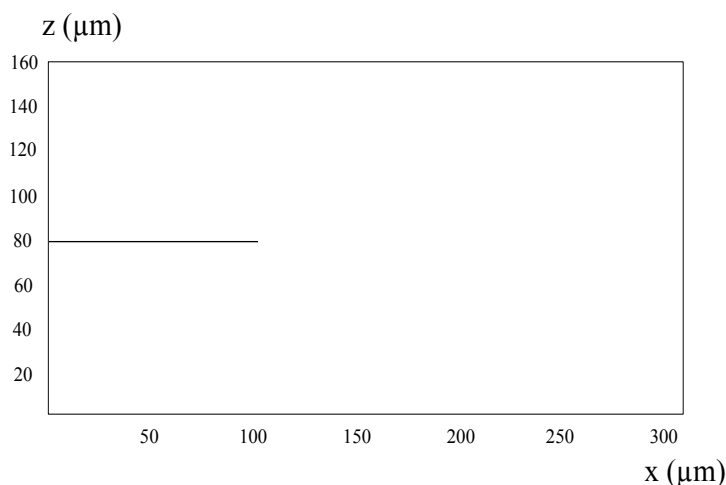


Figure 4.11 – Schéma d'une couche mince de verre d' $1 \mu\text{m}$ d'épaisseur et de $120 \mu\text{m}$ de long.

Un des intérêts de ce code de calcul électromagnétique est la définition des matériaux uniquement par leurs constantes diélectriques, ce qui permet de définir des géométries diverses. Comme nous nous intéressons à des modes proches des résonances de la constante diélectrique, la permittivité du verre est ici modélisée par trois fonctions lorentziennes dont deux d'entre elles ont des fréquences

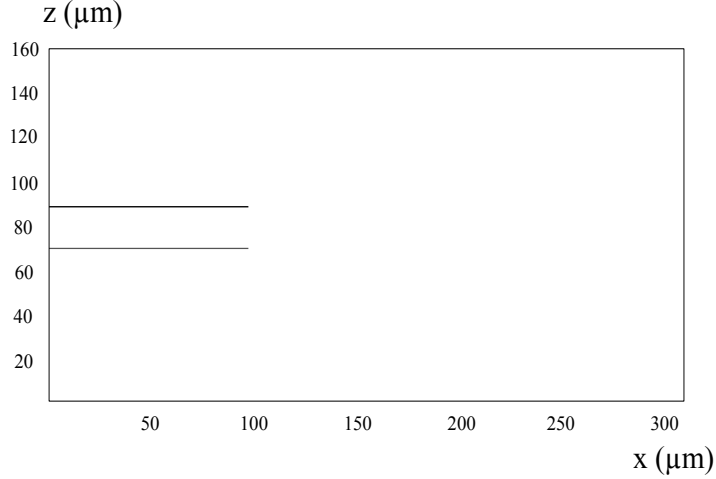


Figure 4.12 – Schéma de la section d'un microtube de verre de 100 μm de long, de 20 μm de diamètre extérieur et avec des parois d'un micromètre d'épaisseur. Le choix de la longueur plus faible que la couche mince est arbitraire et n'influence pas le résultat.

de résonances coïncidant avec celles des phonons transverses :

$$\epsilon_{\text{verre}}(\omega) = \epsilon_{\infty} + \sum_{j=1}^3 \frac{\sigma_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega^2 - i\Gamma_j \omega} \quad (4.14)$$

Cette modélisation est une très bonne approximation des données expérimentales recueillies par Palik [91] comme le montre la figure 4.13. La source excitatrice du microtube est une source monochromatique de fréquence centrale $17,3 \cdot 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ (10,9 μm) très proche de la fréquence où l'absorption du verre est minimale et où la longueur de propagation du PPS est maximale (voir les figures 3.4 et 3.10). Le choix d'une source monochromatique a été motivé par l'interprétation difficile des résultats représentant la diffraction polychromatique du PPS. En effet comme la vitesse de groupe varie suivant la fréquence, certains modes lents vont interférer avec d'autres plus rapides, ce qui complexifie encore plus l'étude. En outre, dans ce cas, l'excitation de forme gaussienne serait impulsionnelle et non continue comme dans l'étude présentée. La recherche du bon pas de temps, pour lequel le PPS serait diffracté en champ lointain, serait alors encore plus délicate. Néanmoins l'utilisation d'une source monochromatique n'est pas si loin de la réalité expérimentale car le chauffage thermique est assimilable à une source incohérente. Il est donc possible de reproduire l'étude pour différentes longueurs d'onde et de sommer les contributions obtenues. Cependant nous n'avons simulé la diffraction que pour

une seule longueur d'onde car l'objectif était de s'assurer de la diffraction du PPS à la pointe du tube.

Les simulations présentées sont toutes calculées au même instant $t = 55 T$ (correspondant à approximativement 600 pas de temps de calcul) pour lequel l'onde excitatrice a pu parcourir tout le domaine de calcul. Les résultats présentés sont la répartition de la densité d'énergie électromagnétique ($U = \frac{\epsilon E^2}{2} + \frac{B^2}{2\mu}$) pour une couche mince puis pour une section de tube. En effet le tube n'est représenté que sous la forme d'une section en deux dimensions qui se modélise de la même manière que deux couches minces proches l'une de l'autre. L'étude théorique du chapitre 3 a en effet montré que la longueur de propagation du PPS était la plus importante pour le mode 1 et plus faible pour les autres modes azimutaux, ce qui nous a incité à négliger la dégénérescence de modes. Cependant nous n'avons pas étudié de formes rigoureusement coniques car expérimentalement les pointes de tube sont étirées et forment un cône de faible angle au sommet (inférieur à 10°). Enfin le tracé de la densité d'énergie électromagnétique nous permettra de connaître sous quelle ouverture angulaire le maximum de l'énergie sera diffracté.

4.2.1 Diffraction d'une couche mince

On simule une section de couche mince en verre dont l'épaisseur varie entre 0,5 et 3 μm . En effet les épaisseurs choisies permettent de visualiser le passage de PPS de courte portée à longue portée. À 3 μm le PPS sera fortement absorbé par la couche de verre et se propagera sur des distances beaucoup plus faibles qu'à 0,5 μm , épaisseur suffisante pour observer la diffraction du PPS en champ lointain. La propagation du PPS est étudiée le long de la structure jusqu'à sa diffraction en bout de film. La définition des caractéristiques de la source pour le code est difficile car, même si elle est monochromatique, son comportement ne doit pas être trop éloigné d'une excitation. Pour ce faire, la source excite continûment la structure de verre : elle est placée sur l'axe $x = 0$, centrée sur la couche mince, s'étendant de $y = 10 \mu\text{m}$ à $y = 150 \mu\text{m}$ et apodisée par une fonction gaussienne de largeur 40 μm à mi-hauteur. Cette apodisation permet d'utiliser une source d'onde plane monochromatique qui n'excite que la couche mince de verre et non tout le reste du domaine de calcul. En effet en n'utilisant pas cette apodisation et en diminuant brutalement l'extension spatiale de la source à quelques micromètres, une forte diffraction des bords de la source (sous forme d'ondes sphériques) se produirait, polluerait les simulations et empêcherait d'observer le développement des PPS. Néanmoins cette apodisation n'empêche pas complètement cet artefact de simulation comme nous le verrons par la suite. Les figures 4.14 montrent nettement la propagation du PPS à partir d'une abscisse de quelques dizaines de micromètres, avant qu'il soit diffracté le long de l'axe x pour des épaisseurs de 0,5 et 1 μm à une abscisse $x = 120 \mu\text{m}$ pour la géométrie que nous avons définie. En effet la longueur de propagation du PPS pour ces épaisseurs est de l'ordre de quelques milliers de microns

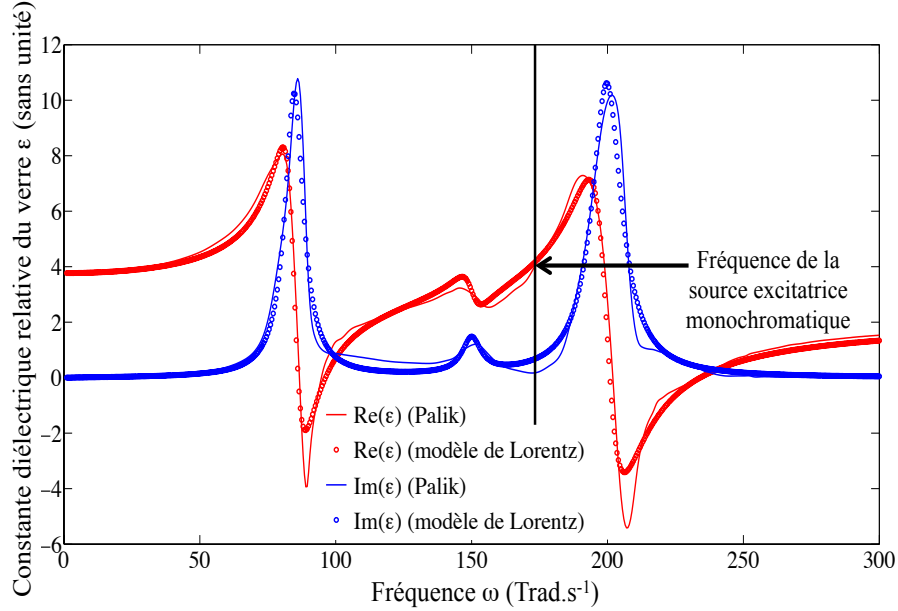


Figure 4.13 — Tracé des parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique du verre à partir des données expérimentales recueillies par Palik (traits pleins) et à partir de la modélisation utilisée dans le calcul Meep (points ronds). Le modèle surestime nettement l'absorption du verre à la fréquence considérée, mais cela n'a pas de conséquences critiques sur notre étude car cette absorption reste toujours très faible en absolu. Ceci n'empêche pas le PPS de se propager sur de larges distances.

(voir la figure 3.4), ce qui permet une propagation du PPS jusqu'au bout de la couche mince de longueur $120\ \mu\text{m}$. Ce n'est pas le cas pour l'épaisseur $3\ \mu\text{m}$ où la longueur de propagation ne dépasse pas la centaine de microns (voir la figure 3.4), ce qui ne permet pas au PPS d'atteindre le bout de la couche mince. La longueur d'atténuation transverse a aussi un rôle très important dans l'étude de ces figures : celle-ci augmente lorsque l'épaisseur diminue, si bien que pour une épaisseur de $0,5\ \mu\text{m}$, le PPS a pu se coupler avec la source excitatrice sur de larges distances en $\mathbf{z}$ au point qu'aucune diffraction des bords de source n'apparaît. Par contre, quand l'épaisseur augmente, le PPS se concentre de plus en plus sur les parois de verre, de sorte que la diffraction des bords de la source excitatrice est plus nette aux dépens de la propagation du PPS.

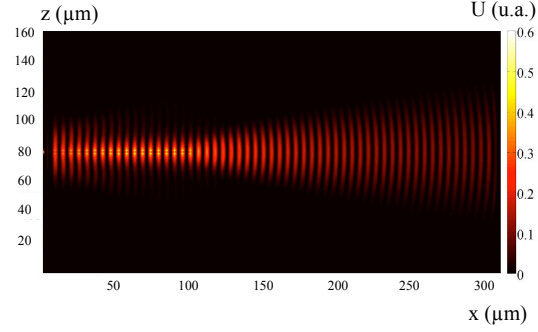
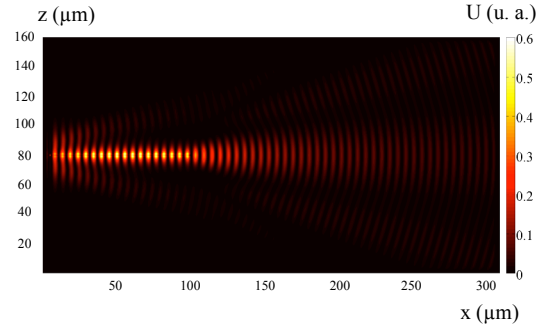
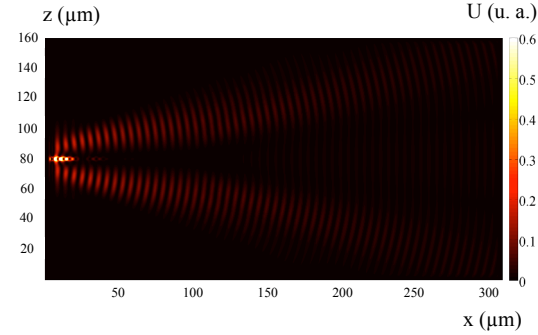
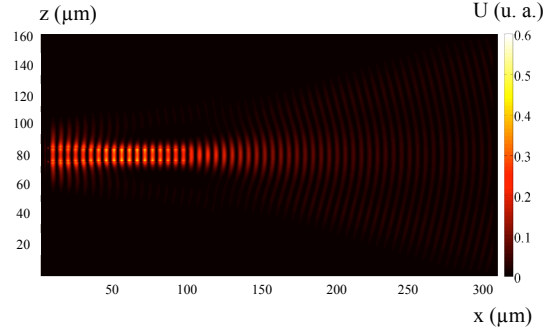
(a) épaisseur = $0,5 \mu m$ (b) épaisseur = $1 \mu m$ (c) épaisseur = $3 \mu m$

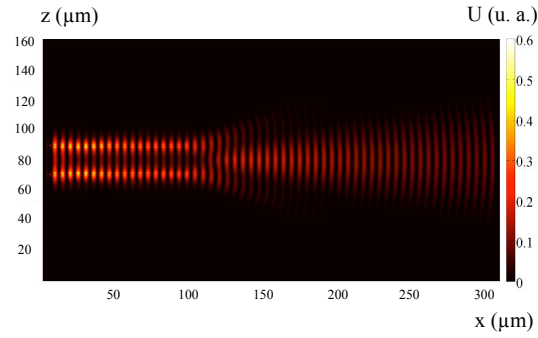
Figure 4.14 – Tracé de la densité d'énergie électromagnétique U en unités arbitraires (u. a.) pour une couche mince en verre de différentes épaisseurs. On observe la propagation puis la diffraction du PPS pour des épaisseurs de $0,5$ et de $1 \mu m$, par contre pour la couche la plus épaisse, le PPS est absorbé par le verre et n'est pas diffracté. Ces résultats sont cohérents avec les résultats théoriques présentés dans la figure 3.4.

4.2.2 Diffraction de la pointe d'un tube

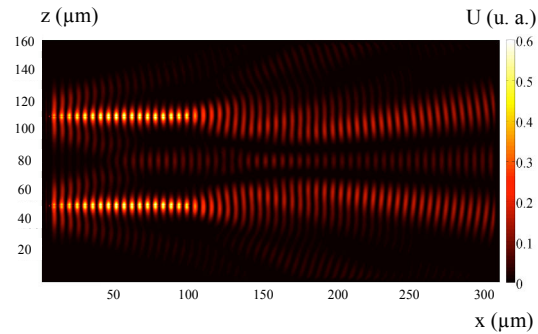
Les simulations présentées dans cette partie ont été réalisées pour une section de tube dont l'épaisseur et le diamètre extérieur varient pour observer leur influence sur la diffraction du PPS. L'examen des résultats de FDTD permet de déterminer la géométrie de tube la plus adéquate pour l'expérience. La figure 4.15 montre les résultats pour trois diamètres extérieurs de tube différents pour une même épaisseur des parois ($1\ \mu\text{m}$). Cette épaisseur est choisie car elle permet de visualiser la transition du couplage des PPS entre les parois et son découplage lorsque celles-ci sont trop éloignées. La source excitatrice a été modifiée lorsque les parois de verre ont été éloignées. De fait elle produisait une onde plane entre les parois du tube qui ne se couplait pas au PPS et polluait la diffraction de celui-ci. En effet la source ne sert qu'à exciter le PPS de la structure et si une partie de la source ne se couple pas au PPS, elle continue sa propagation et provoque des artefacts de simulation qu'il convient de supprimer. Pour ce faire nous avons apodisé la fonction par deux fonctions gaussiennes lorsque les parois étaient trop éloignées (à partir d'un diamètre extérieur de $20\ \mu\text{m}$). Chaque fonction gaussienne est centrée sur la paroi ; sa largeur résulte d'un compromis entre l'objectif de ne pas former d'ondes planes se propageant au milieu du tube et l'importance de limiter la diffraction des bords de source. En effet si les deux sources sont trop larges, elles risquent de se recouper et si elles sont trop étroites elles diffractent plus en bordure. Ce compromis est difficile à trouver de sorte que nous avons réussi à supprimer la formation d'ondes planes à l'intérieur du tube mais pas complètement la diffraction des bords de source quand les parois sont très éloignées (voir la figure 4.15c). Cependant cette diffraction arrive suffisamment tôt dans la simulation pour ne pas perturber le champ diffracté après le tube. Par ailleurs plus le diamètre de la pointe diminue, plus les PPS se propageant le long des parois se couplent d'une paroi à l'autre et diffractent dans la même direction. En effet rigoureusement parlant, lorsque l'épaisseur des parois du tube diminue l'extension spatiale transverse du PPS (selon $\mathbf{z}$) augmente, donc le couplage des PPS aux parois s'affaiblit. Ce faible couplage aboutit paradoxalement à un fort couplage entre les modes de chaque paroi. Par contre, quand le rayon augmente, la direction de diffraction ne change pas, mais le couplage entre les PPS de parois différentes tend à disparaître : la diffraction du PPS à la pointe d'une paroi devient indépendante de celle de l'autre paroi. Ainsi la diffraction du PPS est d'autant plus exacerbée que le diamètre du tube est petit sans que la direction de diffraction soit modifiée. De plus, dans ce dernier cas, les parois étant découplées, leur émission peut devenir incohérente.



(a) Diamètre extérieur de $10\ \mu\text{m}$, la source excitatrice est modulée par une gaussienne centrée en $z = 80\ \mu\text{m}$ et de largeur à mi-hauteur $40\ \mu\text{m}$.



(b) Diamètre extérieur de $20\ \mu\text{m}$, la source excitatrice est modulée par deux gaussiennes centrées en $z = 70\ \mu\text{m}$ et $z = 90\ \mu\text{m}$ et de largeur à mi-hauteur $20\ \mu\text{m}$.



(c) Diamètre extérieur de $60\ \mu\text{m}$, la source excitatrice est modulée par deux gaussiennes centrées en $z = 70\ \mu\text{m}$ et $z = 90\ \mu\text{m}$ et de largeur à mi-hauteur $40\ \mu\text{m}$.

Figure 4.15 – Tracé de la densité d'énergie électromagnétique U en unités arbitraires (u. a.) pour une section de microtube de verre de différents diamètres mais dont les parois ont une épaisseur constante égale à $1\ \mu\text{m}$. On observe un couplage des PPS de chaque paroi pour un diamètre allant jusqu'à $20\ \mu\text{m}$, au-delà la diffraction du PPS à chacune des parois est indépendante l'une de l'autre.

L'épaisseur joue aussi un rôle crucial dans la propagation du PPS et peut empêcher sa diffraction comme le montrent les figures 4.16. Lorsque l'épaisseur est faible, le couplage des PPS de chaque paroi sera plus fort à cause de l'augmentation de la longueur d'atténuation transverse. C'est ce que met en évidence la figure 4.16a pour une épaisseur de $0,5 \mu\text{m}$. Plus l'épaisseur croît, plus l'extension transverse du PPS décroît, mais l'absorption du verre croît, si bien que le PPS se couple de moins en moins avec l'autre paroi (voir la figure 4.16b) jusqu'à ne plus pouvoir se propager car l'absorption est trop forte (voir la figure 4.16c) alors que le diamètre reste inchangé, égal à $20 \mu\text{m}$. En conséquence l'épaisseur est un des paramètres-clés de la propagation du PPS et pour un diamètre de tube donné (assez petit) il sera possible de trouver une épaisseur suffisamment faible pour laquelle les PPS pourront se coupler d'une paroi à l'autre. Ces résultats sont à mettre en lien avec les tracés théoriques de la longueur de propagation du PPS dans un nanotube avec des parois de plus en plus fines au chapitre 3 (voir la figure 3.10).

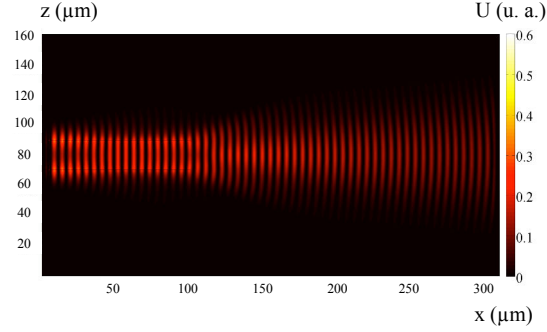
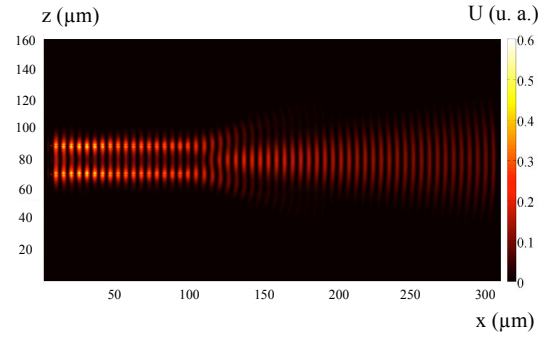
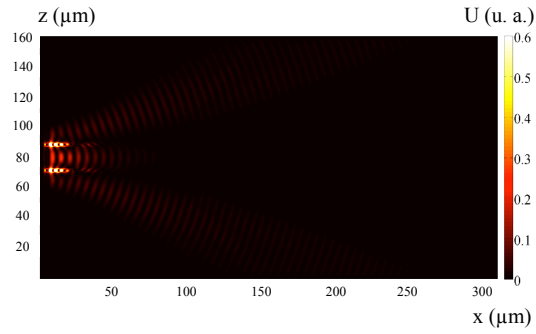
(a) *Épaisseur 0,5 μm .*(b) *Épaisseur 1 μm .*(c) *Épaisseur 3 μm .*

Figure 4.16 – Tracé de la densité d'énergie électromagnétique U en unités arbitraires (u. a.) pour une section de microtube de verre de différentes épaisseurs, pour un même diamètre extérieur de $20\ \mu\text{m}$. La source excitatrice est, dans les trois cas, modulée par deux gaussiennes centrées sur les deux parois et de largeur à mi-hauteur $40\ \mu\text{m}$. On observe un couplage des PPS de chaque paroi pour une épaisseur allant jusqu'à $1\ \mu\text{m}$ (limite de couplage), au-delà les PPS se déplacent indépendamment le long de chacune des parois s'ils ne sont pas complètement absorbés par le verre quand l'épaisseur est trop grande.

4.2.3 Ouverture angulaire de la diffraction du PPS

Jusqu'à présent nous avons pu obtenir la direction de diffraction du PPS à la pointe d'une couche mince ou d'un tube : dans les deux cas celle-ci se produit dans la direction longitudinale (axe $\mathbf{x}$). Mais il est aussi possible d'obtenir l'ouverture angulaire de diffraction qui permet de comparer l'émission du PPS à celle, hémisphérique, d'ondes sphériques d'une source ponctuelle (approximation valable pour la pointe du tube dont les dimensions sont environ un ordre de grandeur inférieures à λ). Pour ce faire nous avons calculé l'intégrale de l'énergie électromagnétique sur une période en $x = 90 \mu\text{m}$ où le PPS se déplace encore en surface du verre et en $x = 280 \mu\text{m}$. La dernière intégrale est calculée pour des ordonnées z croissantes en partant du centre de la structure $z_0 = 80 \mu\text{m}$. Lorsque le rapport de l'énergie cumulée du PPS diffracté sur celle du PPS en bout du tube sature, la position correspondante sera celle de la limite du faisceau diffracté. Malheureusement il n'est pas possible de calculer cette ouverture pour toutes les simulations à cause des artefacts des bords de la source excitatrice.

Pour illustration, les résultats pour une couche mince $1 \mu\text{m}$ d'épaisseur et un tube de $10 \mu\text{m}$ et $60 \mu\text{m}$ de diamètres, tous deux avec des parois d'un micron d'épaisseur, sont présentés dans la figure 4.17. Comme dans ces cas d'étude, une partie de la source excitatrice n'est pas couplée avec le tube, ce rayonnement restant élargit artificiellement la diffraction du PPS. L'interaction avec le PPS diffracté produit des interférences que l'on observe dans les points d'inflexion des courbes obtenues, ce qui ne nous permet pas d'en déduire l'ouverture angulaire du champ proche diffracté. C'est pourquoi les résultats concluants n'ont été obtenus que pour une couche mince de $0,5 \mu\text{m}$ d'épaisseur et un tube de $20 \mu\text{m}$ de diamètre et de $0,5$ et $1 \mu\text{m}$ d'épaisseurs (voir la figure 4.18). Cependant dans les trois cas le rapport des énergies ne converge pas vers 1, à cause de l'absorption du verre entre l'abscisse, où est calculée l'énergie de référence, et la pointe. Néanmoins une saturation se produit pour $z = 41 \mu\text{m}$ dans le cas de la couche mince, $z = 45 \mu\text{m}$ et $z = 37 \mu\text{m}$ pour le tube de $0,5$ et $1 \mu\text{m}$ d'épaisseur respectivement.

Ceci aboutit à des ouvertures angulaires totales de $24,5^\circ$ pour la couche mince et $26,6^\circ$ et $22,3^\circ$ pour le tube. C'est ce que confirment les simulations : les variations d'ouverture angulaire sont très faibles entre la couche mince et le tube. Cependant une étude plus approfondie reste nécessaire pour tirer d'autres conclusions, en supprimant au maximum les parasites de simulation. Enfin il est intéressant de comparer l'angle solide de cette émission avec celui d'ondes sphériques à travers leur rapport, pour mieux appréhender l'étroitesse du faisceau du PPS diffracté. En effet, habituellement, l'ouverture angulaire est donnée par le rapport $\frac{\lambda}{\Delta x}$ (avec Δx la largeur de la source) dans l'approximation paraxiale en espace libre. Or le PPS de la couche mince est diffracté pour un angle solide représentant 9% de l'émission thermique hémisphérique, et 10,6% et 7,5% pour le tube, ce qui est surprenant et très intéressant. La diffraction du PPS en bout

de tube représente donc une nouvelle voie potentielle d'émission thermique cohérente et directionnelle de PPS, en plus des réseaux, ce qui reste à prouver expérimentalement.

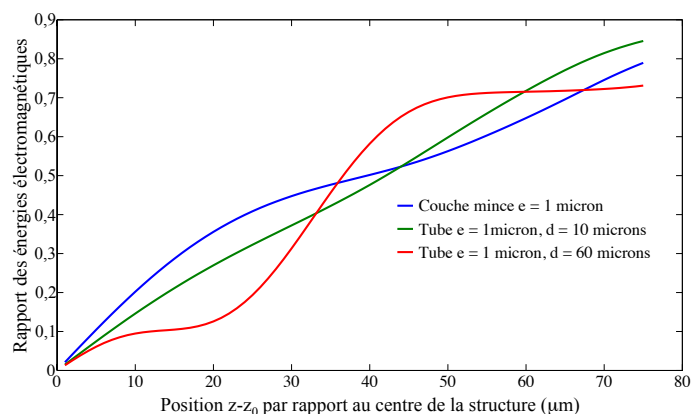


Figure 4.17 – Tracé du rapport des énergies électromagnétiques du PPS diffracté sur celui en bout de tube avant diffraction en fonction de la position $z - z_0$, $z_0 = 80 \mu\text{m}$ étant le centre de la structure. Le calcul a été réalisé pour les simulations de la couche mince de verre d'un micromètre d'épaisseur et pour le tube d'épaisseur $1 \mu\text{m}$ et de diamètres extérieurs $10 \mu\text{m}$ et $60 \mu\text{m}$. Les points d'inflexion des courbes sont le résultat des interférences entre la diffraction des bords de source et celle du PPS.

4.3 Montage expérimental

La mesure expérimentale de la diffraction du PPS nécessite une bonne maîtrise de la fabrication du tube mais aussi un dispositif optique avec en bout un détecteur capable de collecter un signal extrêmement faible (de l'ordre de quelques dizaines de nanowatts d'émission de PPS pour un tube chauffé à 600°C). C'est pourquoi la présentation du montage expérimental va traiter de la fabrication des échantillons puis des éléments permettant de mesurer l'émission thermique, à savoir le détecteur MCT, le spectromètre à transformée de Fourier et enfin le microscope infrarouge.

4.3.1 Fabrication des échantillons

La fabrication de microtubes de verre a été réalisée grâce à la micro-étireuse P-1000 de la marque Sutter Instrument (figure 4.19). À l'origine cet appareil est destiné à fabriquer des pipettes pour la microbiologie ou l'électrophysiologie des cellules animales. Les pipettes simples peuvent être utilisées pour la micro-injection ou la micro-perfusion par exemple, alors que d'autres, avec un

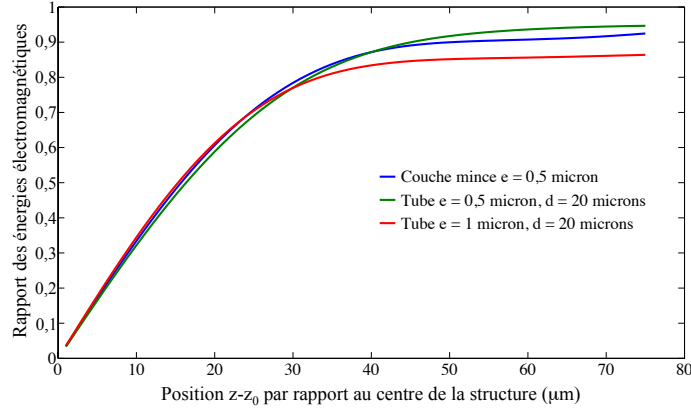


Figure 4.18 – Tracé du rapport des énergies électromagnétiques du PPS diffracté sur celui en bout de tube avant diffraction en fonction de la position $z - z_0$, $z_0 = 80 \mu\text{m}$ étant le centre de la structure. Le calcul a été réalisé pour les simulations de la couche mince de verre de $0,5 \mu\text{m}$ d'épaisseur et pour le tube de diamètre extérieur $20 \mu\text{m}$ d'épaisseurs $0,5 \mu\text{m}$ et $1 \mu\text{m}$.

filament intégré à l'intérieur, permettent de réaliser des mesures de *patch-clamp* (mesure des courants ioniques transitant à travers les membranes cellulaires) ou de mesurer l'activité intracellulaire. Ces applications sont bien sûr très éloignées de notre sujet mais elles nécessitent une très bonne connaissance de la fabrication de micropipettes. En effet la taille de la pointe, sa forme, l'épaisseur des parois, la taille de la partie conique étirée ainsi que la répétabilité des microtubes fabriqués sont des paramètres critiques pour ces études et le sont aussi dans notre cadre.

Le principe de la micro-étireuse est d'utiliser un filament en platine qui peut être carré ou en forme de cuvette (voir figure 4.20) entourant un tube de verre d'un millimètre de diamètre. Un courant parcourt le filament qui s'échauffe par effet joule. Le tube est alors chauffé jusqu'à son point de ramollissement, à ce moment-là deux barres de traction étirent le tube de chaque côté jusqu'à la rupture formant ainsi deux micropointes. Les tubes utilisés sont en verre borosilicate de type Corning 7740 dont le point de ramollissement est à 821°C . Au cours de l'étirement le rapport rayon intérieur sur rayon extérieur a/b reste constant sur toute la partie conique jusqu'à la pointe. Le verre borosilicate n'est pas composé uniquement de SiO_2 (80,6%) mais aussi d'oxyde de bore B_2O_3 (13%) ainsi que d'autres oxydes minoritaires tels que Na_2O (4%) ou Al_2O_3 (2,3%) [84]. Cette composition a bien sûr un impact sur la constante diélectrique du verre considéré mais qui sera peu différente de celle de la silice pure considérée jusqu'à maintenant. Il est possible d'étirer des tubes en silice quasiment pure mais la température de fusion est beaucoup plus élevée (1600°C)



Figure 4.19 – *Micro-étireuse P-1000 de la marque Sutter Instrument.*

et ils ne peuvent donc pas être étirés par la micro-étireuse dont nous disposons.

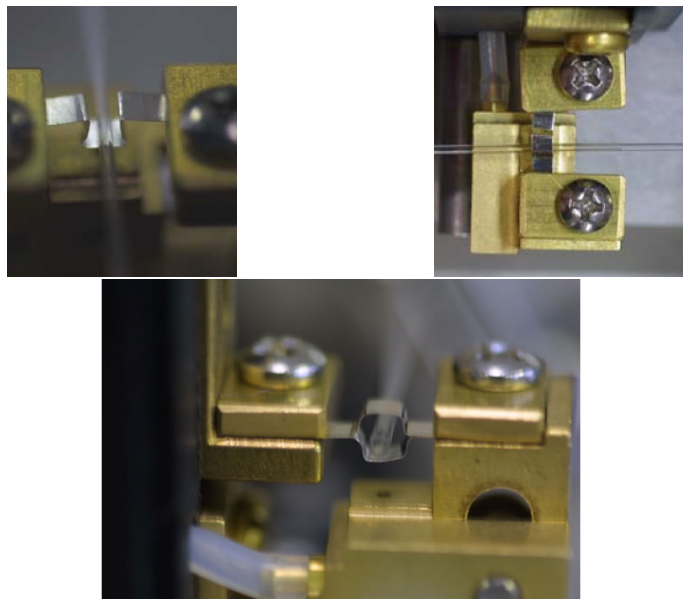


Figure 4.20 – *Images d'un filament en platine entourant un tube d'un millimètre de diamètre avant étirement avec la micro-étireuse P-1000. Le filament peut avoir une forme en cuvette (photo en haut à gauche) ou en carré (photos en haut à droite et en bas). Le choix de la forme du filament aura un impact sur la forme finale de la pointe : la forme en cuvette permet un refroidissement plus rapide du filament compatible avec la fabrication d'électrodes pointues comportant un cône court par exemple [27]. Photos reprises de la référence [84].*

L'étirement du microtube est sujet à différents paramètres qui influent fortement sur la géométrie finale de la pointe : l'intensité de la chaleur, la force de l'étirement, sa vitesse, le temps de refroidissement, la pression de l'air refroidissant le filament ainsi que le délai entre la fin de l'échauffement et le début de l'étirement. Le choix du filament carré ou en cuvette ainsi que ses dimensions influent aussi sur le résultat. Il est même possible de raffiner les résultats en choisissant un étirement par paliers où chaque palier comporte ses paramètres de chauffe, d'étirement (force et vitesse) et de temps de refroidissement. Suivant l'application, les besoins seront différents : des pointes petites (1 à 3 μm de diamètre) pour un cône très court (3 à 4 mm de long) avec des parois épaisses (rapport $a/b = 0,57$) seront adaptées pour des pipettes de *patch-clamp*, tandis que des pipettes de micro-injection pronucléaire (utilisées pour l'injection d'ADN dans des ovocytes pour produire des animaux transgéniques) nécessiteront un cône plus long (6 à 8 mm de long) avec des parois fines (rapport $b = 0,78$) et des pointes très petites de diamètre inférieur au micron (0,7 à 0,3 μm). De plus dans ce dernier cas le cône doit être très régulier, sans épaulement brusque, pour ne pas risquer d'endommager l'ovocyte lors de l'injection [84]. Tous les réglages sont assez complexes à réaliser en même temps pour obtenir une géométrie définie à l'avance si bien que nous avons plutôt utilisé des programmes pré-enregistrés dans l'appareil. Expérimentalement nous avons utilisé des tubes en borosilicate de rapport rayon intérieur sur rayon extérieur $a/b = 0,75$ pour un programme formant des pointes de 0,9 à 0,5 μm de taille de pointe pour un cône de 5 à 7 mm de long. Ce programme a été choisi pour obtenir un diamètre de pointe de tube faible (inférieur au micron) afin d'observer la résonance de PPS pour une longueur de la partie conique la plus petite possible anticipant les problèmes expérimentaux de chauffage de la pointe.

4.3.2 Le détecteur MCT

La mesure du rayonnement infrarouge dépend fortement du type de détecteur utilisé. Deux grandes familles de détecteurs infrarouge se détachent : les détecteurs thermiques et les détecteurs quantiques. Les détecteurs thermiques reposent sur la variation d'un paramètre électrique du matériau en fonction de la chaleur qui permet de remonter au rayonnement auquel l'objet a été soumis. Les détecteurs quantiques, quant à eux, s'appuient sur l'interaction du rayonnement infrarouge avec les électrons du solide, qui se retrouvent excités à un état énergétique plus élevé. Pour que cet effet quantique soit utilisable, les électrons doivent être excités d'un état à un autre où leurs propriétés électroniques sont différentes. Pour un semi-conducteur massif c'est le cas lorsque les électrons sont excités depuis la bande de valence vers la bande de conduction. Si celui-ci est de type n , lorsque les électrons sont dans la bande de valence, ils ne participent pas à la conduction électrique, alors que dans la bande de conduction, ils deviennent des porteurs électriques tout comme les trous le sont dans la bande de valence.

Pour détecter le rayonnement de moyen infrarouge (de 1 à 30 μm) peu énergétique, l'énergie de la bande interdite, séparant la bande de conduction de la bande de valence, doit être très faible. Ceci est possible pour divers semi-conducteurs comme l'alliage mercure-cadmium-tellure formant les détecteurs MCT. En effet la composition de l'alliage $Hg_{1-x}Cd_xTe$ permet de faire varier l'énergie de la bande interdite de 0,073 eV ($x = 0,194$) à 1,49 eV ($x = 1$). Ainsi le rayonnement détecté doit avoir une longueur d'onde inférieure respectivement à 16,9 μm et à 0,8 μm [102]. L'énergie de la bande interdite continue d'ailleurs de diminuer pour des valeurs de x plus faibles, jusqu'à s'annuler (pour $x = 0$, le gap énergétique vaut -0,261 eV). La faible énergie de la bande interdite implique que les électrons excités par l'agitation thermique du solide peuvent aussi franchir cette barrière énergétique, ce qui produit un bruit électrique en sortie. Pour assurer une bonne sensibilité au détecteur, il est nécessaire de le refroidir, d'où l'importance de maintenir les détecteurs MCT à la température de l'azote liquide, soit 77 K.

Le détecteur MCT peut fonctionner soit comme un détecteur photovoltaïque, soit comme un détecteur photoconducteur. Dans notre cas il est utilisé comme un photoconducteur c'est-à-dire que sa conductivité est proportionnelle à la densité de porteurs (ici paire électrons-trous). La variation du flux de photons incidents va entraîner une variation du flux de porteurs (dû au passage des électrons de la bande de valence à la bande de conduction) et donc une variation de sa conductivité. Dans notre expérience c'est la variation de tension qui est mesurée pour une intensité du courant fixe aux bornes du photoconducteur. La variation de tension est proportionnelle à la puissance lumineuse incidente.

Le gros avantage de ce détecteur est de pouvoir mesurer de très faibles signaux infrarouges. Le paramètre clé estimant le rapport signal sur bruit d'un détecteur quantique est la détectivité D^* définie comme :

$$D^* = \frac{\sqrt{A\Delta\nu}}{NEP} \quad (4.15)$$

où A est la surface du détecteur, $\Delta\nu$ la largeur de la bande passante et NEP la puissance équivalente de bruit. L'unité de la détectivité est le *Jones* soit le $\text{cm} \cdot \sqrt{\text{Hz}} \cdot \text{W}^{-1}$. La puissance équivalente de bruit est la puissance incidente à la limite de détection, soit pour un rapport signal sur bruit de 1. Ce paramètre ainsi défini permet de classer les matériaux détecteurs par facteur de mérite où les détecteurs MCT occupent les premières places dans le moyen infrarouge (voir figure 4.21). Cependant la détectivité D^* dépend fortement de la composition de l'alliage MCT, si bien que la détectivité peut être très élevée autour de 12–13 μm (de l'ordre de $5 \cdot 10^{10}$ *Jones*), ou tendre vers zéro dès que l'on dépasse des longueurs d'onde de l'ordre de 15 μm . En cas de mesure de longueurs d'onde plus élevées, la forte détectivité doit être sacrifiée au profit d'une plus large bande de détection. Cet ajustement est possible grâce aux variations continues des propriétés de l'alliage $Hg_{1-x}Cd_xTe$ pour obtenir les propriétés désirées [44]. Dans le cadre de notre expérimentation nous avons cherché à mesurer un signal

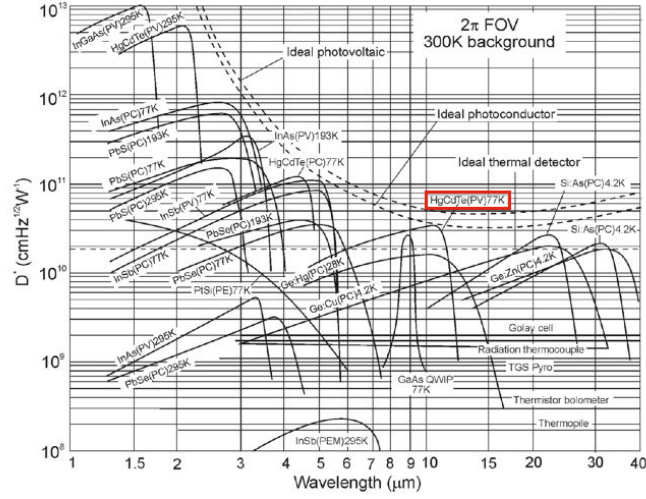


Figure 4.21 – Défectivité de différents détecteurs infrarouge à leur température de fonctionnement indiquée entre parenthèses. La fréquence de hachage utilisée est 1 kHz pour tous les détecteurs sauf pour la thermopile, le thermocouple, le bolomètre, la cellule Golay et le détecteur pyroélectrique où elle est à 10 Hz. Chaque détecteur est sensé mesurer le rayonnement hémisphérique d'un environnement à 300 K. Les courbes de détectivité théorique D^* limitées par le fond pour des détecteurs photoconducteurs, photovoltaïques ainsi que des détecteurs thermiques sont représentées en pointillés. PC : détecteur photoconducteur, PV : détecteur photovoltaïque, PE : détecteur photoémissif et PEM : détecteur photoélectromagnétique. On observe que le détecteur MCT est nettement l'appareil le plus sensible autour de 10 μm . Figure reprise de la référence [102].

très faible autour de 10 μm , c'est pourquoi le détecteur utilisé est un MCT-A dont la détectivité est très forte ($4,83 \cdot 10^{10}$ Jones à 13 μm) mais dont la fréquence de coupure se situe à 650 cm^{-1} correspondant à 15,38 μm (voir figure 4.22). Le détecteur a une surface optique de $6,25 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2$ et une bande de fréquence d'intégration électronique de $30 \cdot 10^3 \text{ Hz}$. La détectivité maximale correspond donc à une puissance minimale détectée de 90 pW à 13 μm , et si on prend la détectivité minimale sur toute la gamme de détection (2 à 15 μm) on obtient une puissance minimale détectée de 359 pW. Ceci signifie que, quelle que soit la longueur d'onde détectée, le rapport signal du PPS (estimé à quelques dizaines de nanowatts pour une pointe de 1 μm à 600°C) sur bruit sera de l'ordre de 100. Par conséquent le signal cherché est largement mesurable même s'il est très faible en amplitude. Cependant cette très forte détectivité implique un désavantage très important dans la mesure d'émission : la forte non linéarité du détecteur que nous détaillerons dans l'étude des artefacts de mesure.

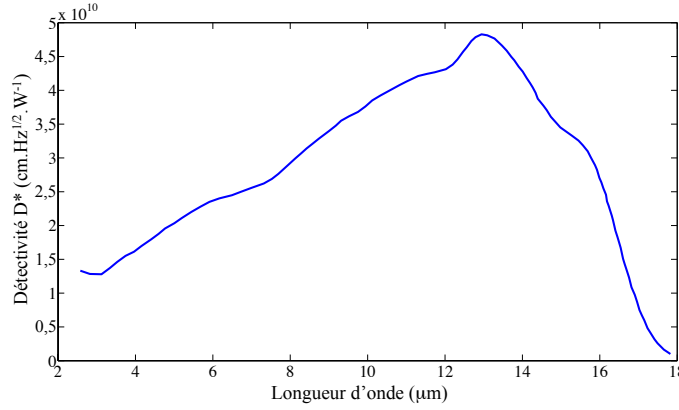


Figure 4.22 – Délectivité du MCT-A utilisé pour l'expérience. La zone de longueur d'onde supérieure à 15,38 μm n'est pas utilisée à cause de la chute brutale de délectivité qui peut altérer les mesures (données fournies par Thermo Fisher Scientific).

4.3.3 Le spectromètre à transformée de Fourier infrarouge

Le détecteur MCT seul ne suffit pas à mesurer un spectre. En effet s'il reçoit un rayonnement polychromatique, le signal de sortie contiendra la contribution de toutes les longueurs d'onde qu'il sera bien difficile à extraire telle quelle. Les premières mesures de spectres de rayonnement utilisaient un prisme dispersif ou un réseau qui permettait de mesurer la contribution de chaque longueur d'onde séparément. Le temps de mesure était long et la complexité mécanique du système rendait certaines parties mobiles sujettes à de la casse mécanique. Un autre type de spectromètre infrarouge non dispersif est apparu pour pallier ces inconvénients : le spectromètre à transformée de Fourier. Il s'appuie sur un interféromètre de Michelson pour détecter l'émission infrarouge. Le signal $I(\delta)$ est détecté quand la différence de chemin optique δ entre le miroir fixe et le miroir mobile varie (voir schéma en figure 4.23). Dans le cas d'une source monochromatique, l'intensité reçue par le détecteur peut être exprimée comme :

$$I(\delta) = \frac{I(\sigma)}{2} [1 + \cos(2\pi\delta\sigma)] \quad (4.16)$$

avec σ le nombre d'onde de la source et $I(\sigma)$ l'intensité de la source. Le signal comporte une composante continue $\left(\frac{I(\sigma)}{2}\right)$ et une composante alternative $\left(\frac{I(\sigma)}{2}\cos(2\pi\delta\sigma)\right)$. La composante continue est supprimée par le spectromètre qui ne mesure que les variations en intensité en fonction de la différence de chemin optique δ . Cependant le signal mesuré n'est pas aussi simple car il faut prendre en compte la dépendance spectrale de la séparatrice et de la réponse du

détecteur MCT. En définitive l'intensité mesurée pour une source monochromatique peut s'écrire sous la forme :

$$I(\delta) = S(\sigma)\cos(2\pi\delta\sigma) \quad (4.17)$$

En considérant maintenant une source polychromatique, l'intensité totale mesurée peut être formulée par :

$$I(\delta) = \int_{-\infty}^{+\infty} S(\sigma)\cos(2\pi\delta\sigma)d\sigma \quad (4.18)$$

C'est ce signal qui forme l'interférogramme fourni en sortie du détecteur MCT. La transformée de Fourier est ensuite calculée par l'ordinateur pour obtenir le spectre de la source :

$$S(\sigma) = 2 \int_0^{+\infty} I(\delta)\cos(2\pi\delta\sigma)d\delta \quad (4.19)$$

La dernière expression suppose que le miroir mobile puisse se déplacer sur une distance infinie, ce qui n'est bien sûr pas réaliste. La différence de marche finie implique que l'intégrale de l'équation (4.19) soit elle aussi finie et que le spectre de la source soit obtenu pour une résolution spectrale limitée telle que $\Delta\sigma_{max} = 1/\delta_{max}$. Or le spectromètre dont nous disposons (Nicolet 6700 de la marque Thermo Fisher Scientific) propose une résolution maximale de $0,06 \text{ cm}^{-1}$ (se traduisant par une résolution de 6 nm autour de $10 \text{ }\mu\text{m}$). La spectrométrie à transformée de Fourier a le gros intérêt de permettre des acquisitions de spectres rapides (durée d'acquisition de l'ordre de la seconde pour un spectre) car le détecteur mesure toutes les longueurs d'onde en même temps mais celles-ci sont modulées grâce à l'interféromètre. La démodulation est réussie facilement grâce à la transformée de Fourier. Le spectromètre est piloté par le logiciel Omnic sur ordinateur. La photo 4.24 montre l'appareil utilisé et la figure 4.23 présente son schéma optique.

4.3.4 Le microscope infrarouge

Le microscope infrarouge permet de capter l'émission locale de microstructures dont l'amplitude sera très faible par rapport au reste de l'environnement. L'appareil utilisé est un modèle Continu μm de la marque Thermo Fisher Scientific. Il est couplé au spectromètre *via* un périscope formé de deux miroirs plans (voir la photo dans la figure 4.25). Le microscope permet d'étudier les propriétés radiatives de micro-échantillons d'une taille de l'ordre de $10 \text{ }\mu\text{m}$ (limite due à la diffraction). Son rôle est de conduire le rayonnement de la source émissive vers le spectromètre, ce qui n'est absolument pas l'utilisation standard d'un tel appareil. En fait il sert principalement, à l'inverse, à conduire le rayonnement d'une source extérieure (située dans le spectromètre) vers l'échantillon pour mesurer sa réflectivité ou sa transmittivité (pour des échantillons d'épaisseur

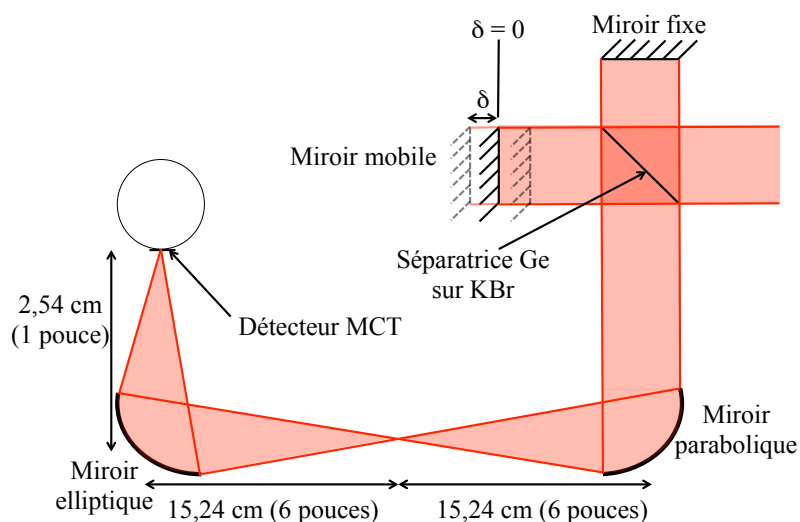


Figure 4.23 – Schéma optique du spectromètre à transformée de Fourier infrarouge. Tous les composants optiques sont des miroirs recouverts d'or pour assurer la réflectivité la plus forte possible en infrarouge et pour supprimer la dispersion chromatique inhérente à des lentilles (type Ge ou ZnSe en infrarouge). La séparatrice en KBr nécessite un environnement sec pour éviter sa dégradation.

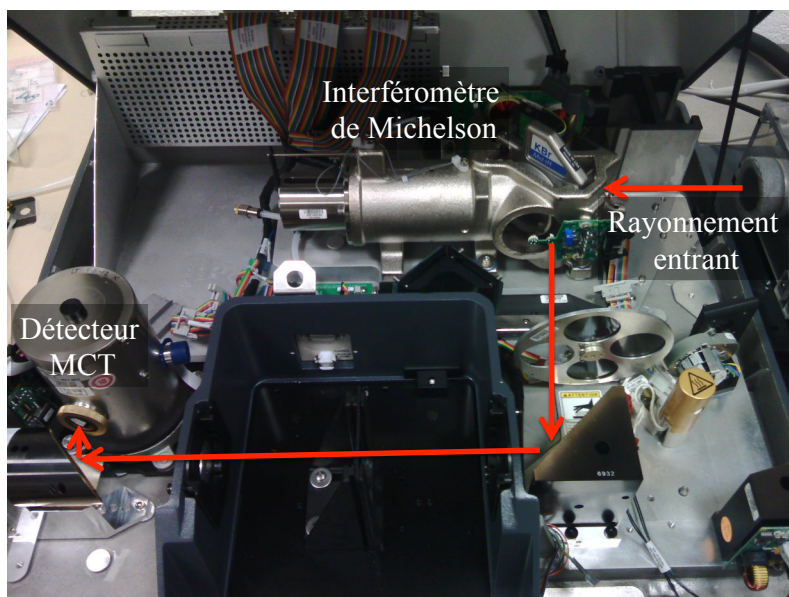


Figure 4.24 – Spectromètre à transformée de Fourier infrarouge Nicolet 6700 de Thermo Fisher Scientific. La photo correspond au schéma optique de la figure précédente. Le trajet du rayon lumineux est tracé en rouge.

suffisamment faible). Le chemin pris par le rayonnement infrarouge est colinéaire à la lumière visible, autorisant une vision directe de la zone analysée. Les lentilles en verre étant opaques en infrarouge et les lentilles diélectriques transparentes ayant une bande de détection très étroite, toutes les optiques du microscope sont des miroirs dorés. En outre ces miroirs suppriment la dispersion chromatique qui est inévitable avec des lentilles diélectriques.



Figure 4.25 – *Liaison périscopie pour coupler le microscope et le spectromètre en mode émission. les deux miroirs plans permettent de conserver le faisceau collimaté sortant du microscope et arrivant à l'entrée de l'interféromètre.*

Le microscope est muni d'une platine (porte-échantillon) motorisée dont les mouvements sont contrôlés par un logiciel (At μ s) avec une précision micrométrique. Il est placé dans une enceinte de purge d'air sec pour limiter les influences atmosphériques sur les spectres mesurés (vapeur d'eau et dioxyde de carbone notamment) et pour préserver la séparatrice composée en partie de KBr qui se dégrade en présence d'humidité. L'échantillon dont on mesure l'émission est placé à la distance focale d'un objectif Cassegrain dont le schéma est présenté en figure 4.26. Ce composant a le gros avantage d'être composé uniquement de miroirs supprimant les aberrations chromatiques fatales pour la mesure d'un spectre sur une gamme spectrale étendue. Cependant la détection du rayonnement ne se fait pas pour une incidence normale, à cause du miroir primaire qui induit une zone d'ombre où le rayonnement n'est pas mesuré, mais pour une incidence oblique. En effet l'objectif Cassegrain est composé de deux

miroirs, le rayonnement est collecté par un miroir secondaire concave pour des angles compris entre 30° et 51° par rapport à la normale. Le rayonnement est ensuite focalisé sur le miroir primaire convexe qui, à son tour, renvoie le faisceau à l'infini. L'objectif a un grossissement de 32 imposé par le constructeur.

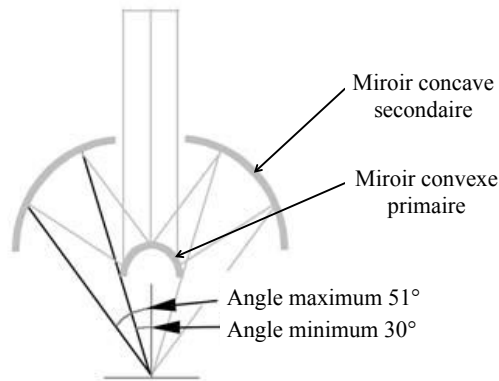


Figure 4.26 – Schéma de l'objectif Cassegrain.

Le faisceau suit le trajet optique présenté au schéma 4.27 correspondant à la photo 4.28. Le faisceau est collimaté en sortie de l'objectif puis est refocalisé par un miroir concave sur un diaphragme permettant de limiter la zone d'observation à un rectangle d'environ $75\ \mu\text{m}$ par $55\ \mu\text{m}$ au maximum pour l'objectif utilisé. Ces dimensions maximales sont aussi imposées par le constructeur. Le deuxième miroir concave renvoie le faisceau collimaté qui continuera son chemin jusqu'au spectromètre.

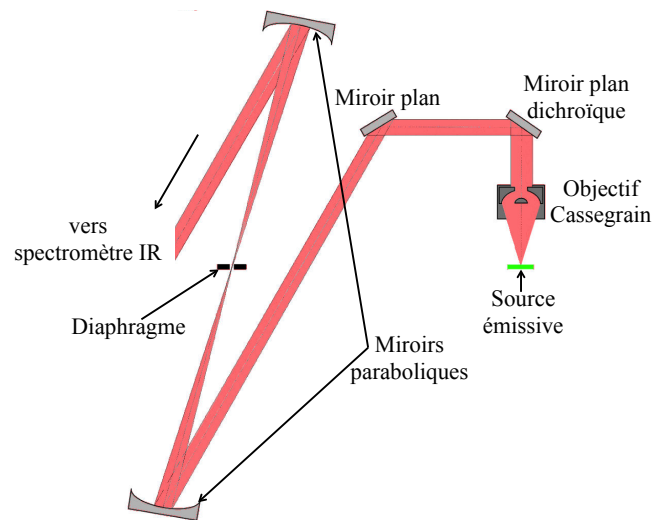


Figure 4.27 – Schéma optique du microscope infrarouge Continuum. Le miroir dichroïque permet de séparer les rayonnements visible et infrarouge, le rayonnement visible continue son chemin vers l'oculaire tandis que l'infrarouge se propage vers l'intérieur du microscope (données fournies par Thermo Fisher Scientific).

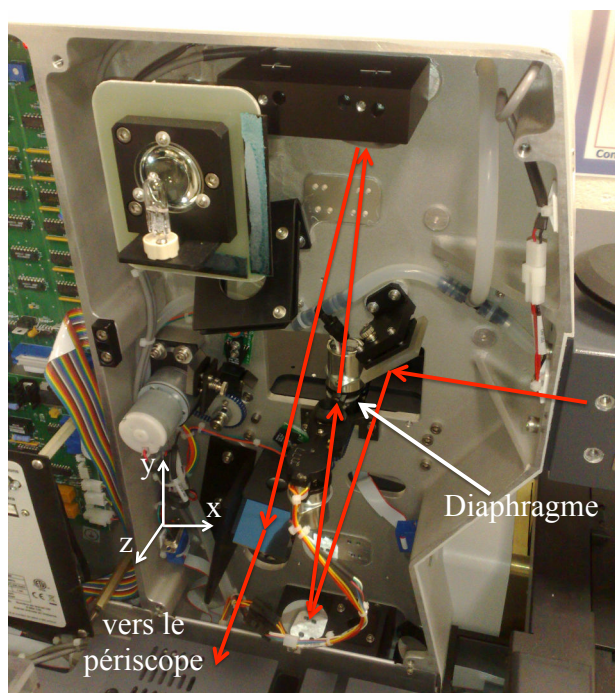


Figure 4.28 – Intérieur du microscope *Continuum*, le trajet du faisceau IR est tracé en rouge. À part les deux miroirs paraboliques focalisant le faisceau sur un diaphragme, il n'y a que des miroirs plans conservant le faisceau collimaté tout au long de son trajet. Le dernier miroir à 45° renvoie le faisceau vers le périscope reliant le microscope au spectromètre en mode émission.

Les méthodes de mesure du PPS déjà utilisées jusqu'à présent s'appuient en grande partie sur le phénomène de diffraction. L'idée principale de ce travail de thèse est de présenter une nouvelle forme de diffraction du PPS à la pointe d'un tube de verre micrométrique. Cette diffraction a été validée grâce à des simulations FDTD montrant que le PPS se propageait en champ lointain le long de l'axe du tube. Elle nécessite maintenant une preuve expérimentale : pour ce faire nous avons couplé un microscope infrarouge (IR) à un spectromètre à transformée de Fourier (FTIR). Ce type de montage est très utilisé pour des mesures de réflexion ou de transmission IR mais a dû être légèrement adapté pour des mesures d'émission. De plus la connaissance des artefacts de mesure d'émission en microscopie IR est, à notre connaissance, très limitée à ce jour. Néanmoins celle-ci est essentielle pour pouvoir réaliser des mesures convaincantes d'émission de micro-objets. Pour cette raison nous allons d'abord nous concentrer sur l'examen des différents parasites expérimentaux rencontrés lors des expériences de micro-spectroscopie IR.

Chapitre 5

La micro-spectroscopie IR adaptée à l'émission thermique

Comme le détecteur MCT ne fournit pas directement la puissance détectée pour chaque longueur d'onde, un étalon est nécessaire pour obtenir des mesures quantitatives. Ce chapitre décrit la procédure d'étalonnage pour mesurer l'émissivité des échantillons observés au microscope IR. Tout d'abord le principe d'obtention expérimentale de l'émissivité permet de comprendre quels sont les signaux d'intérêt. Ensuite les influences des différentes composantes optiques du système sont analysées afin de mettre en évidence divers effets parasites propres à ce type de mesure. Enfin les détails de la procédure d'étalonnage fournissent une base pour la suite des résultats de nos manipulations.

5.1 Principe général de mesure de l'émissivité

Le signal fourni par le spectromètre lors d'une mesure d'émission est très loin d'être directement l'émissivité de l'échantillon. Le signal d'émission brut peut être modélisé selon la formule [44 et 75] :

$$S_S(\lambda, T_S) = H(\lambda)[\varepsilon(\lambda, T_S)P(\lambda, T_S) + B(\lambda) + \rho(\lambda, T_S)P(\lambda, T_E)], \quad (5.1)$$

où $S_S(\lambda, T_S)$ est le signal expérimental mesuré provenant de l'échantillon à la température T_S , $H(\lambda)$ la fonction de transfert optique et électronique du spectromètre, $\varepsilon(\lambda, T_S)$ l'émissivité spectrale de l'échantillon à la température T_S , $P(\lambda, T_S)$ et $P(\lambda, T_E)$ les fonctions de Planck respectivement aux températures T_S et T_E , $B(\lambda)$ le rayonnement ambiant provenant de tous les composants optiques du microscope et du spectromètre, et enfin $\rho(\lambda, T_S)$ la réflectivité spectrale de l'échantillon à la température T_S . Le dernier terme $\rho(\lambda, T_S)P(\lambda, T_E)$ correspond au rayonnement de l'environnement à la température T_E réfléchi par l'échantillon et capté par le microscope. La réflectivité du verre étant importante dans le moyen infrarouge, ce terme ne peut pas être négligé. Par contre

le verre est opaque dans cette gamme de longueurs d'onde, ce qui permet de négliger sa transmittivité, et donne l'équation d'après la loi de Kirchhoff :

$$\rho(\lambda, T_S) = 1 - \varepsilon(\lambda, T_S). \quad (5.2)$$

La formule (5.1) peut alors être réécrite en :

$$S_S(\lambda, T_S) = H(\lambda)[\varepsilon(\lambda, T_S)[P(\lambda, T_S) - P(\lambda, T_E)] + B(\lambda) + P(\lambda, T_E)]. \quad (5.3)$$

En enlevant l'échantillon, le signal mesuré provient uniquement de l'environnement ambiant. Il peut être exprimé sous la forme :

$$S_E(\lambda, T_E) = H(\lambda)[B(\lambda) + P(\lambda, T_E)]. \quad (5.4)$$

En remplaçant un corps noir de température T_S à la place de l'échantillon, le signal mesuré s'écrit cette fois :

$$S_B(\lambda, T_S) = H(\lambda)[B(\lambda) + P(\lambda, T_S)]. \quad (5.5)$$

Ces trois mesures fournissent l'émissivité de l'échantillon :

$$\varepsilon(\lambda, T_S) = \frac{S_S(\lambda, T_S) - S_E(\lambda, T_E)}{S_B(\lambda, T_S) - S_E(\lambda, T_E)}. \quad (5.6)$$

De manière plus générale, si le corps noir est à une température différente T_B , la formule générale est :

$$\varepsilon(\lambda, T_S) = \frac{S_S(\lambda, T_S) - S_E(\lambda, T_E)}{S_B(\lambda, T_S) - S_E(\lambda, T_E)} \frac{P(\lambda, T_B) - P(\lambda, T_E)}{P(\lambda, T_S) - P(\lambda, T_E)}. \quad (5.7)$$

En définitive la mesure de l'émissivité d'un échantillon nécessite trois mesures : une de l'échantillon chauffé, une de l'environnement ambiant sans l'échantillon et enfin une d'un corps noir placé au même endroit que l'échantillon chauffé, ceci afin de ne pas modifier la surface détectée et l'angle solide entre les mesures. En effet ce raisonnement s'appuie sur deux hypothèses implicites : la surface détectée et l'angle solide sont les mêmes pour toutes les mesures, et la fonction de transfert ne dépend pas de l'amplitude du signal (détecteur linéaire). De plus, la dépendance angulaire de l'émissivité et la réflectivité sont momentanément négligées, ce qui ne modifie pas la démarche. Cet aspect sera étudié plus en détail dans la méthode d'étalonnage du spectromètre. Cependant avant de continuer plus loin dans la procédure d'étalonnage, il est important de se pencher sur quelques parasites de mesure spécifiques à la micro-spectroscopie en émission. Leur connaissance et leur suppression sont indispensables afin de s'assurer de l'exactitude et de la répétabilité des expériences menées.

5.2 Quelques artefacts de mesure

5.2.1 La soustraction du rayonnement ambiant

La mesure du rayonnement ambiant ou rayonnement de fond est indispensable : sa contribution ne peut pas être supprimée directement lors des mesures mais elle doit être soustraite *a posteriori* pour ne garder que le signal provenant de l'échantillon. Dans un spectromètre à transformée de Fourier, Griffiths et De Haseth ont isolé le rayonnement de fond dû à la séparatrice dont l'émission est mesurée par le détecteur comme celle de tous les autres composants optiques [44]. Les miroirs d'or ayant une réflectivité très proche de 1, leur émissivité est presque nulle, ce qui limite leur contribution au rayonnement de fond contrairement à la séparatrice en KBr et Ge. Cependant l'addition du microscope IR influence aussi le rayonnement ambiant.

Pour le prouver nous avons d'abord mesuré le rayonnement de fond à travers l'objectif du microscope, puis avec un miroir d'or placé au niveau de l'objectif du microscope. Ce miroir a ensuite été inséré entre le spectromètre et le microscope (à la sortie de l'interféromètre) et enfin il a été positionné entre l'interféromètre et le détecteur MCT. La figure 5.1 représente les spectres expérimentaux.

Le signal le plus important est obtenu en mesurant le rayonnement ambiant quand ni le spectromètre ni le microscope ne sont bloqués ; cependant le signal n'est pas modifié, que le miroir soit placé ou non au niveau de l'objectif. Le signal diminue quand le spectromètre est isolé, mais très faiblement. Au contraire le signal est nul quand l'interféromètre de Michelson est bloqué. En effet dans ce dernier cas le détecteur ne mesure plus de variation d'intensité (induite par le déplacement du miroir mobile). Cela signifie aussi que l'émission des composants optiques entre l'interféromètre et le détecteur n'est pas prise en compte dans le signal mesuré. Ces mesures montrent en outre que malgré l'utilisation du microscope, l'émission du rayonnement de fond provient majoritairement de la séparatrice. Ces résultats sont explicables par des calculs de puissance.

Tous les calculs qui vont suivre s'appuient sur la même formule :

$$P = L\Omega S \cos(\theta) \quad (5.8)$$

avec L la luminance énergétique en $\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}$, Ω l'angle solide d'émission ou de détection, S la surface d'émission ou de détection et θ la direction d'émission par rapport à la normale à la surface.

En effet la puissance détectée dépend de l'étendue du faisceau, égale au produit de la surface par l'angle solide, la plus petite, c'est-à-dire que cette grandeur est déterminée soit par le détecteur soit par la surface émissive. Dans notre cas l'angle solide de détection du MCT vaut $\Omega_D = 0,0027 \text{ sr}$ pour une surface $S_D = 6,25.10^{-4} \text{ cm}^2$, soit une étendue de faisceau de $1,69.10^{-6} \text{ cm}^2.\text{sr}$. Quand le diaphragme est ouvert au maximum avec un objectif 32x, la surface d'émission vaut $S_{obj} = 4,22.10^{-5} \text{ cm}^2$ avec un angle solide $\Omega_{obj} = 1,51 \text{ sr}$, d'où une étendue de faisceau de $6,37.10^{-5} \text{ cm}^2.\text{sr}$. *A priori* l'étendue du faisceau semble

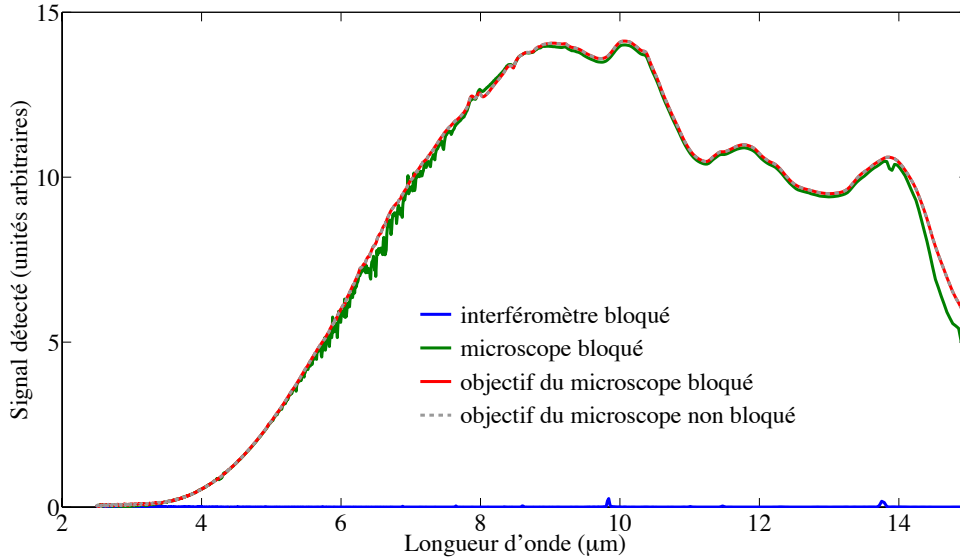


Figure 5.1 — Tracé des signaux détectés lorsque l'interféromètre, puis le microscope puis l'objectif sont bloqués par des miroirs d'or. Le dernier signal (en gris) représente le signal du rayonnement ambiant, provenant de l'intérieur du spectromètre et du microscope, ainsi que le rayonnement ambiant mesuré à travers l'objectif du microscope. On observe entre 5 et 8 μm l'absorption de l'eau dans l'air qui altère légèrement les mesures.

être limitée par le détecteur, or il n'en est rien car il faut prendre en compte l'image du diaphragme sur le détecteur MCT afin de tenir compte des différents grandissements du chemin optique (objectif de grandissement 32 et grandissements de 6 pour les miroirs parabolique et elliptique situés dans le spectromètre comme le montre la figure 4.23). En réalité l'image du diaphragme sur le détecteur vaut $S_{imag} = 4,25 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2$ avec un angle solide de détection égal à $\Omega_{imag} = 0,0021 \text{ sr}$, d'où une étendue du faisceau plus faible, égale à $8,93 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2 \cdot \text{sr}$. C'est donc l'image du diaphragme sur le MCT qui limite la puissance du flux détecté. Nous reviendrons sur ce point lors de l'étude de l'effet de l'objectif et du diaphragme.

La luminance est estimée par la formule :

$$L = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \varepsilon(\lambda, T) P(\lambda, T) d\lambda \quad (5.9)$$

où $\lambda_1 = 2 \mu\text{m}$ et $\lambda_2 = 15 \mu\text{m}$ sont prises comme les limites approximatives de détection du MCT. On associe la séparatrice à un film de Ge (la contribution

du KBr à l'émissivité est négligée, en effet la luminance d'un film de KBr de 10 mm d'épaisseur entre 2 et 20 μm a été estimée à $7.10^{-2} \text{ W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}$ [74]) dont on estime la luminance à $L_{sep} \approx 21,7 \text{ W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}$ en prenant une émissivité du germanium égale à 0,26 [4]. Malgré sa faible émissivité, sa contribution au signal détecté n'est absolument pas négligeable devant l'émission d'un échantillon chauffé, observé par l'objectif du microscope. Prenons le cas d'un corps noir à 300 K, dans les mêmes conditions. Sa luminance L_{obj} entre 2 et 15 μm vaut $83,4 \text{ W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}$. Il sera observé avec un angle θ de $40,5^\circ$ (donnée constructeur). Mais après l'objectif, le faisceau sera collimaté avec une surface d'émission grossie 32 fois par l'objectif. Ce faisceau va se superposer à celui émis par la séparatrice au niveau de celle-ci si bien que le rapport entre la puissance collectée par l'objectif P_{obj} et celle émise par la séparatrice P_{sep} vaut :

$$\frac{P_{obj}}{P_{sep}} = \frac{L_{obj} S_{obj} G^2 \cos(\theta)}{L_{sep} S_{faisceau} \cos(\theta')} \quad (5.10)$$

avec G le grandissement de l'objectif, S_{obj} la surface délimitée par le diaphragme (rectangle de 75 μm de long pour 55 μm de large au maximum avec l'objectif 32x), $S_{faisceau}$ la surface du faisceau collimaté sur la séparatrice avec un diamètre de 3,81 cm (1,5 pouces) et θ' l'angle formé par la séparatrice par rapport au faisceau égal à 45° . Ce rapport est égal à 1,5% en théorie, expérimentalement on obtient 2% à partir des courbes de la figure 5.1. Cet écart est vraisemblablement dû à d'autres rayonnements parasites de l'intérieur du microscope. Néanmoins ce faible rapport confirme les mesures montrant que le rayonnement à température ambiante provient quasiment uniquement du spectromètre.

La limitation de la zone d'observation permet de mesurer l'émission d'une surface très petite, mais diminue aussi énormément le flux observé. Et cette diminution est critique, car la puissance émise par un corps noir à 300 K, collectée par l'objectif Cassegrain, est deux ordres de grandeur inférieure à celle du rayonnement de la séparatrice. Cependant le microscope a tout de même l'intérêt de filtrer une grande partie du rayonnement de fond et de limiter la saturation. Il est alors possible d'utiliser des gains pour augmenter le signal recherché.

En définitive une mesure directe ne fournit à première vue que le spectre du rayonnement de fond et le signal de l'objet observé est quasiment invisible mais il reste mesurable, car il est supérieur à la NEP (signal de l'ordre de 3 nW pour une NEP d'environ 0,4 nW). De manière générale la mesure d'un signal très faible est délicate car elle nécessite de supprimer convenablement le rayonnement ambiant comme l'expliquent Kember *et al.* [62]. Il ne suffit pas de soustraire le spectre du rayonnement de fond (dû principalement à la séparatrice de l'interféromètre) au signal mesuré car la phase du rayonnement provenant de la séparatrice n'est pas la même que celle du rayon provenant du microscope transmis par la séparatrice. Quand le miroir mobile de l'interféromètre est dans la position de différence de marche nulle entre les deux rayons provenant du microscope, les rayons émis par la séparatrice possèdent une différence de marche

non nulle, comme le montre la figure 5.2. En effet pour le rayonnement émis par la séparatrice, les deux trajets lumineux ne sont pas équivalents. Ceci justifie la soustraction des interférogrammes au lieu des spectres afin que le calcul spectral ne prenne en compte que les composantes de l'interférogramme correspondant à la même position du miroir pour une différence de marche nulle, c'est-à-dire pour une même relation de phase. Ainsi les interférogrammes sont enregistrés en même temps que les spectres, l'interférogramme du rayonnement de fond est aligné par rapport à celui de l'échantillon chauffé, avant de faire la soustraction des deux interférogrammes.

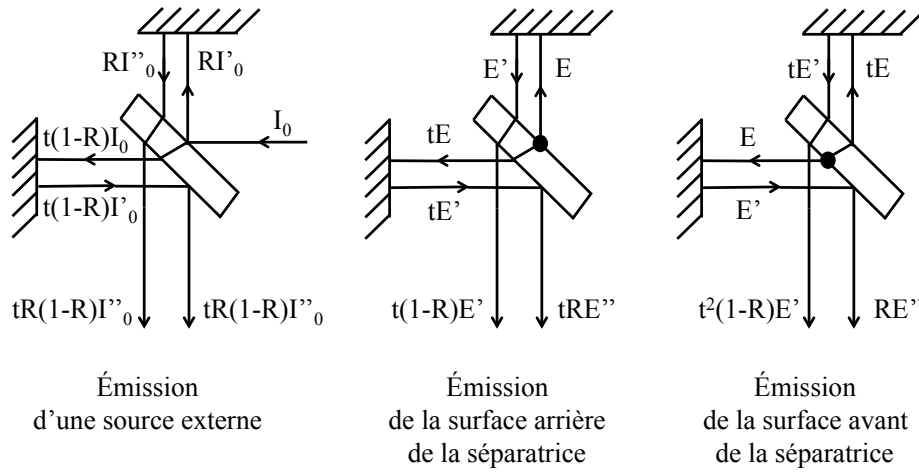


Figure 5.2 – Différences de phase des signaux d'émission provenant de la séparatrice en comparaison avec ceux d'une source externe (soit le microscope dans notre cas). R : réflectivité de la séparatrice, t : transmittivité de la séparatrice, I_0 , I'_0 et I''_0 (E , E' et E'') représentent les intensités des rayons lumineux de la source externe (de la séparatrice) qui ont subi zéro, une ou deux réflexions sur la séparatrice ou les miroirs avec les changements de phase associés. Les miroirs sont supposés être des réflecteurs parfaits (figure reprise de la référence [62]).

En guise d'exemple l'émission d'un échantillon de SiC plan est mesurée lorsqu'il est chauffé à 300°C. Les signaux bruts de mesure sont présentés en figure 5.3 : ils montrent que, même chauffé à 300°C, le rayonnement de fond représente la majorité de la mesure du spectre du SiC chauffé. La figure 5.4 représente les interférogrammes du rayonnement de fond, de l'échantillon chauffé et de sa correction. De fait les interférogrammes représentés sont la dérivée des interfé-

rogrammes physiquement détectés par le MCT si bien que le point de différence de marche nulle se situe autour du point 8185 du miroir mobile. L'utilisation de la dérivée de l'interférogramme est motivée par des problèmes de correction de phase (pour plus de détails voir la référence [44]). Le zoom dans l'insert permet de voir le déphasage entre les interférogrammes du rayonnement de fond (courbe bleue), de l'échantillon de SiC chauffé (courbe verte) et de l'échantillon chauffé aligné avec le rayonnement de fond au point de différence de marche nulle (courbe rouge). La figure 5.5 permet de comparer les spectres d'émission du SiC chauffé lorsque, d'une part les spectres sont soustraits (courbe verte) et d'autre part, lorsque les interférogrammes sont soustraits (après alignement). Outre la différence d'amplitude très importante, le signal obtenu après soustraction des spectres est négatif entre 11 et 13 μm , ce qui prouve que cette méthode de soustraction du signal du rayonnement de fond n'est pas adéquate.

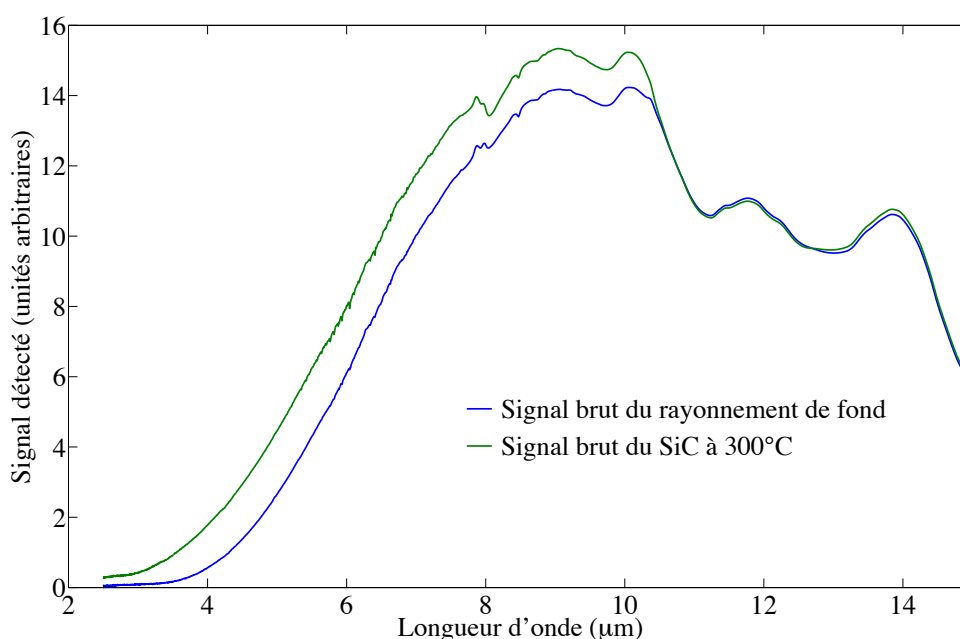


Figure 5.3 – Spectres bruts de mesure d'un échantillon de SiC chauffé à 300°C et du rayonnement ambiant.

Cela dit, pour une surface d'émission donnée, augmenter la température de l'échantillon a évidemment l'intérêt de diminuer la contribution du signal du rayonnement ambiant au signal total mesuré. En effet dans le cas d'un corps noir à 800 K, la puissance du flux mesuré par le détecteur vaut environ 250 nW, ce qui représente presque la moitié du signal. Cependant augmenter la température de l'échantillon va provoquer un échauffement de l'objectif qui va

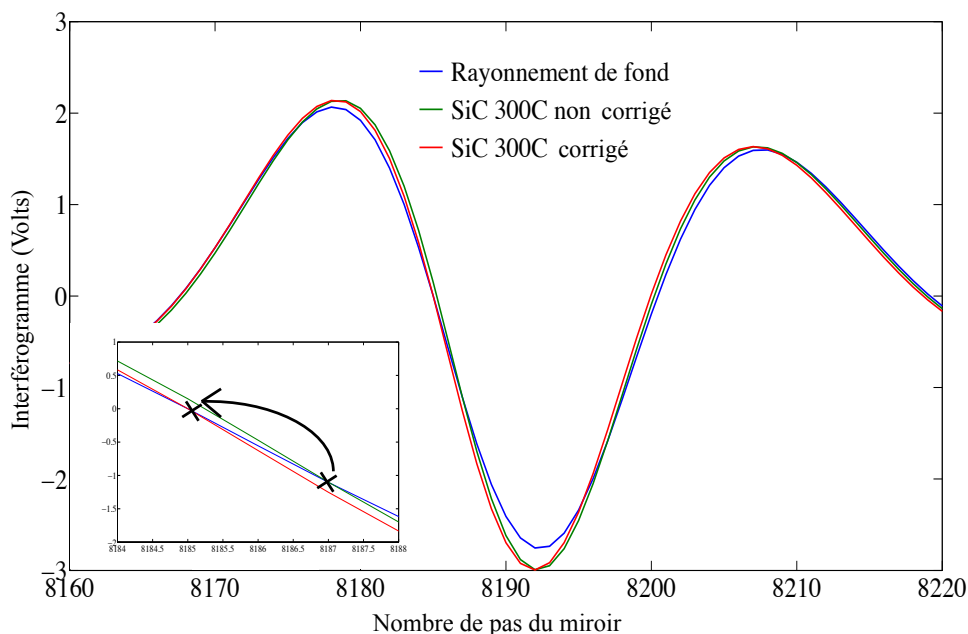


Figure 5.4 – Interférogrammes du rayonnement ambiant (courbe bleue), du rayonnement émis par un échantillon de SiC chauffé à 300 °C non ré-aligné (courbe verte) et ré-aligné (courbe rouge). Le zoom dans l'insert permet de mieux visualiser l'alignement des interférogrammes autour de la position du miroir de différence de marche nulle (les croix montrent la méthode d'alignement des interférogrammes).

lui aussi rayonner et participer au signal mesuré, ce que nous allons étudier par la suite.

5.2.2 Effet du chauffage des optiques

Les signaux mesurés en microscopie IR par émission thermique sont si faibles qu'ils sont sujets à tous types d'influences comme la mise sous tension de l'appareil. Cette influence se déroule sur des temps très longs, de l'ordre de quelques heures. Le spectromètre infrarouge doit toujours rester sous tension, car chaque coupure de courant suivie d'un rallumage de l'appareil provoque un vieillissement prématuré du laser rouge He-Ne utilisé pour vérifier le parallélisme des miroirs de l'interféromètre et pour synchroniser l'appareil sur l'échantillonnage des mesures. Cependant *a priori* rien ne poussait à laisser le microscope IR toujours sous tension.

Nous avons mené une expérience assez simple en mesurant le rapport des signaux d'émission du rayonnement de fond (aucun échantillon n'étant placé sous l'objectif du microscope) pour différents instants sur le signal au temps $t = 0$.

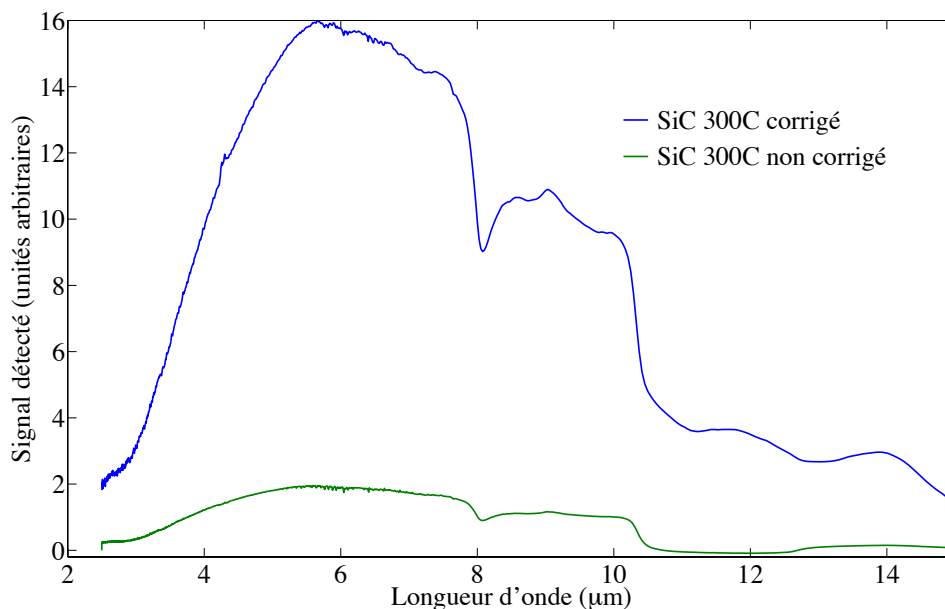


Figure 5.5 – Signaux mesurés d'un échantillon de SiC chauffé à 300°C après soustraction de rayonnement ambiant, par soustraction de spectres (courbe verte) ou par soustraction d'interférogrammes (courbe bleue).

La figure 5.6 présente ces résultats. L'origine du temps a été prise au moment où le détecteur MCT avait été refroidi à l'azote liquide, le microscope étant alors hors tension. Le signal a convergé assez vite en 20 minutes, sans plus de variation notable du signal entre 7 et 14 μm : les mesures à $t = 110$ minutes et à 200 minutes l'attestent. A $t = 200$ minutes, le microscope a été mis sous tension, la dérive thermique due au chauffage de l'électronique du microscope a beaucoup influé sur le signal qui enregistrait une augmentation de l'ordre de 5 à 10%. Cette dynamique a continué de $t = 260$ minutes à $t = 380$ minutes, pourtant une convergence du signal est apparue entre $t = 320$ minutes et $t = 380$ minutes. Il a fallu attendre au moins trois heures pour voir s'atténuer les effets de dérive thermique dûs à la mise sous tension du microscope.

À $t = 380$ minutes, les lampes d'éclairage de l'objectif et du diaphragme, nécessaires à la visualisation des échantillons à travers l'oculaire, ont été allumées. L'effet de dérive thermique a repris de plus belle pour $t = 395$ et 410 minutes. Cette dérive est beaucoup plus problématique. Pour une demi-heure d'utilisation des lampes d'éclairage, le signal varie d'environ 1%, ce qui semble très faible *a priori*. Or le rayonnement de fond du spectromètre a été estimé à 300 nW et la dérive thermique due aux lampes ajoute une fluctuation de l'ordre de

3 nW sur la valeur du flux mesuré par le détecteur, ce qui est proche en ordre de grandeur de la puissance des signaux de PPS recherchés pour un microtube (quelques dizaines de nanoWatts). Ainsi le microscope est toujours gardé sous tension (ou du moins mis sous tension au moins trois heures avant une expérience) mais les lampes d'éclairage ne peuvent rester trop longtemps allumées sous peine de détérioration rapide. Le mieux est donc de les utiliser le plus rapidement possible lors de la visualisation d'échantillons et de les éteindre lors des mesures IR.

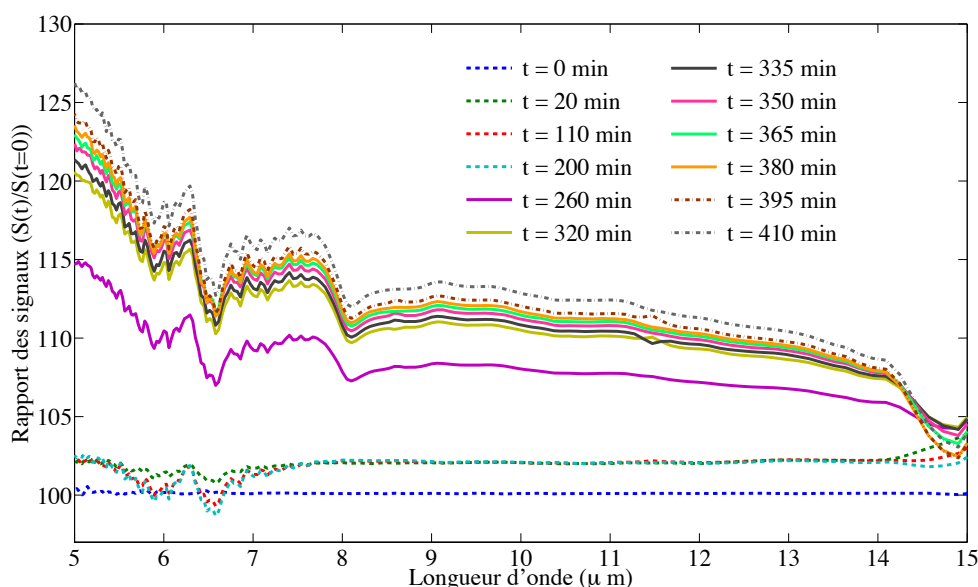


Figure 5.6 – Rapport des signaux détectés du rayonnement pour différents instants. Le détecteur est refroidi au temps $t = 0$, le microscope est mis sous tension à $t = 200$ minutes et les lampes d'éclairage sont allumées à $t = 380$ minutes.

Le chauffage d'un échantillon induit aussi une dérive thermique à cause de l'objectif placé à une dizaine de millimètres de celui-ci, qui sera inévitablement chauffé. En définitive nous avons décidé de suivre la procédure suivante :

- focalisation de l'objectif sur l'échantillon déjà chaud à l'aide des lampes d'éclairage puis celles-ci sont éteintes et l'échantillon est enlevé de la platine motorisée
- mesure du rayonnement de fond incluant le chauffage des optiques dû aux lampes de chauffage, l'échantillon est ensuite remplacé sous l'objectif
- mesure du signal d'émission de l'échantillon chauffé qui est ensuite de nouveau enlevé

- mesure du rayonnement de fond incluant le chauffage de l'objectif
- moyenne des interférogrammes des rayonnements de fond
- alignement de la moyenne des interférogrammes des rayonnements de fond avec l'interférogramme de l'échantillon chauffé
- soustraction des interférogrammes
- obtention du spectre d'émission de l'échantillon chauffé.

Cette démarche a été suivie afin de limiter l'influence du chauffage des optiques dû aux lampes d'éclairage et à l'échantillon chauffé. Nous avons choisi de faire la moyenne des interférogrammes des rayonnements de fond car les mesures ont montré qu'ils étaient très légèrement différents en amplitude (de l'ordre de quelques centièmes de volts sur une valeur totale de 4 à 5 volts pic à pic). Cette moyenne entend se rapprocher du rayonnement de fond présent lors de la mesure de l'échantillon chauffé. La première étape peut aussi être réalisée sur l'échantillon froid, la visualisation de la focalisation est alors facilitée car elle n'est pas gênée par la dilatation thermique de l'échantillon. Néanmoins cela ne remet pas en cause la première mesure du rayonnement de fond qui tiendra compte dans ce cas de l'effet des lampes d'éclairage et de l'objectif chauffé.

5.2.3 Influence de l'objectif

L'objectif est nécessaire pour collecter l'émission d'une zone très petite. C'est lui qui définit l'angle solide de détection, cependant nous avons vu dans la partie 5.2.1 que cet angle solide ne limitait pas la puissance du signal détecté. Cette partie vise à prouver expérimentalement cette affirmation ainsi qu'à vérifier que l'objectif n'influence pas spectralement le rayonnement collecté. Pour ce faire nous avons mesuré le rayonnement d'une plaque de verre chauffée à 500°C, dont nous avons soustrait le rayonnement de fond. Nous avons utilisé deux objectifs de grossissements différents 15x et 32x et d'ouvertures numériques respectives 0,58 et 0,65. L'ouverture numérique NA est liée à l'angle maximal de détection θ par la formule :

$$NA = n \sin(\theta) \quad (5.11)$$

avec n l'indice optique du milieu traversé (ici l'air). Or dans le cas d'un objectif Cassegrain, cet angle θ correspond en fait à l'angle central du cône de détection, comme le montre le schéma de l'objectif Cassegrain en figure 4.26. Cela dit le calcul de l'angle solide de l'objectif n'est pas modifié : $\Omega_D = 2\pi(1 - \cos(\theta))$, il donne $\Omega_D = 1,16$ sr pour l'objectif 15x et $\Omega_D = 1,51$ sr pour le 32x. Si les objectifs n'ont pas d'influence spectrale sur les signaux mesurés et si leurs angles solides limitent le flux détecté, le rapport des intensités doit être constant et égal au rapport des angles solides qui vaut 0,77 dans notre cas. Pour s'assurer de notre résultat nous avons répété les mesures pour différentes ouvertures de diaphragme définissant la surface de détection (de $550 \mu\text{m}^2$ à $4200 \mu\text{m}^2$).

Les résultats sont présentés dans les figures 5.8 et 5.9 avec les signaux bruts dans la figure 5.7. Les rapport des signaux sont constants entre 3 et $15 \mu\text{m}$. En-

dessous de $3\text{ }\mu\text{m}$ le détecteur semble souffrir d'un problème de détectivité, ce qui ne nous pose pas de problème dans l'absolu étant donné que nous ne concentrerons pas nos mesures dans cette bande spectrale par la suite. La moyenne des rapports expérimentaux s'établit à 0,94 avec un écart-type de 0,08. Ce résultat confirme le fait que l'angle solide de l'objectif n'a pas d'impact sur la puissance radiative détectée, les signaux sont identiques quel que soit l'objectif utilisé aux erreurs de mesure près. Cet écart de 10 – 15% par rapport à 1 est causé par un léger défaut de centrage des miroirs de l'objectif 32x. De plus le rapport constant entre les signaux, pour deux objectifs différents et pour une surface égale, prouve que l'objectif n'influence pas spectralement les signaux mesurés.

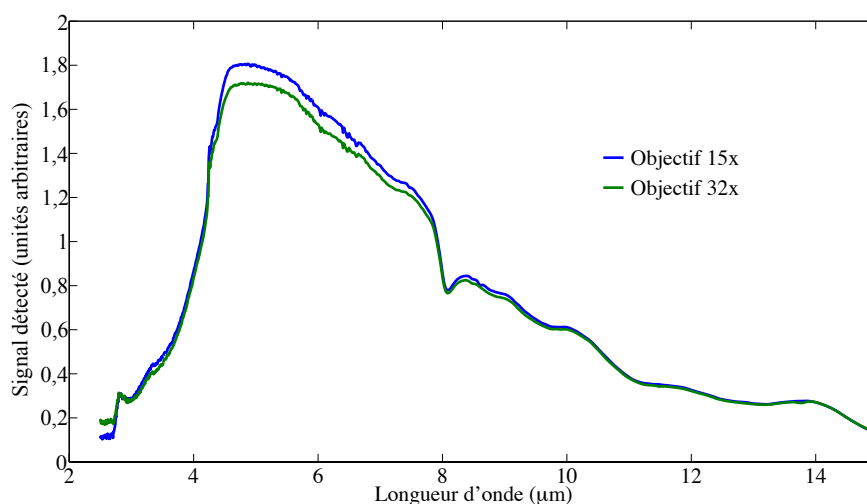


Figure 5.7 – Spectres des signaux détectés d'une plaque de verre chauffée à $500\text{ }^{\circ}\text{C}$ avec une surface de détection de $1550\text{ }\mu\text{m}^2$, pour deux objectifs de grandissement et d'angle solide de détection différents. Ceux-ci sont quasiment identiques, signe que l'angle solide de l'objectif n'a pas d'influence sur la puissance du signal détecté.

5.2.4 Influence du diaphragme

Le diaphragme est indépendant de l'objectif car il est placé à l'intérieur du microscope au foyer de deux miroirs paraboliques, c'est-à-dire dans le plan de Fourier (voir le schéma 4.27). Il est très important car il permet de définir la forme et surtout la taille de la zone d'observation. Nous avons voulu tester l'effet du changement de taille du diaphragme sur le signal avec l'objectif 32x et l'objectif 15x. Pour cela la taille de la zone d'observation a été modifiée d'une

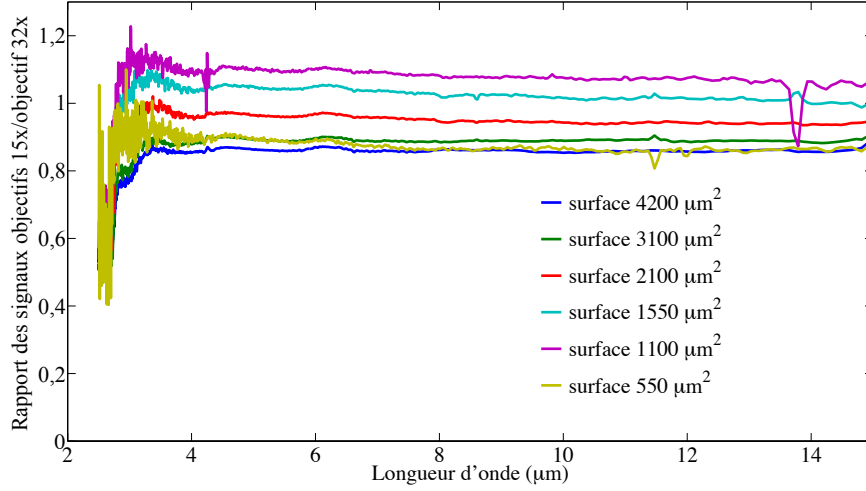


Figure 5.8 — *Rapports des spectres obtenus avec les objectifs 15x et 32x. Chaque courbe correspond à une surface de détection.*

surface d'environ $100 \mu\text{m}^2$ (correspondant à un carré de $10 \mu\text{m}$ de côté) jusqu'à une surface d'environ $4000 \mu\text{m}^2$ (pour un rectangle de $75 \mu\text{m}$ de long pour $55 \mu\text{m}$ de large). Le signal mesuré est toujours l'émission d'une plaque de verre chauffée à 500°C , les résultats sont présentés en figure 5.10. L'intégration du signal d'émission (en ayant soustrait le rayonnement de fond) est faite entre $2,5$ et $15 \mu\text{m}$ puis tracée en fonction de l'étendue du faisceau (produit de l'angle solide de détection Ω_{imag} par l'image de la surface d'observation sur le détecteur MCT S_{imag}). Nous allons expliquer plus en détails pourquoi c'est cette étendue du faisceau qui limite la puissance mesurée.

Le signal détecté n'est pas limité par l'étendue du faisceau au niveau de l'objectif car nous avons vu dans la section précédente 5.2.3 que la modification de l'angle solide de l'objectif ne modifiait pas la puissance détectée en gardant une surface d'observation fixe. Dans ce cas il semblerait que ce soit le produit de l'angle solide de détection du MCT Ω_D par sa surface S_D qui limite le flux, or lorsque la surface du diaphragme diminue, le flux détecté baisse aussi en intensité au lieu d'être constant comme le montre la figure 5.10. Ce résultat prouve que ce n'est donc pas non plus le détecteur qui limite l'étendue du faisceau. Cependant si cette étendue est définie par le produit $\Omega_{\text{imag}} S_{\text{imag}}$, les résultats obtenus dans les figures 5.7, 5.8, 5.9 et 5.10 deviennent cohérents. Lorsque l'objectif est modifié, l'image de la surface d'observation sur le MCT ne change pas, en revanche quand la taille du diaphragme varie, la surface d'observation

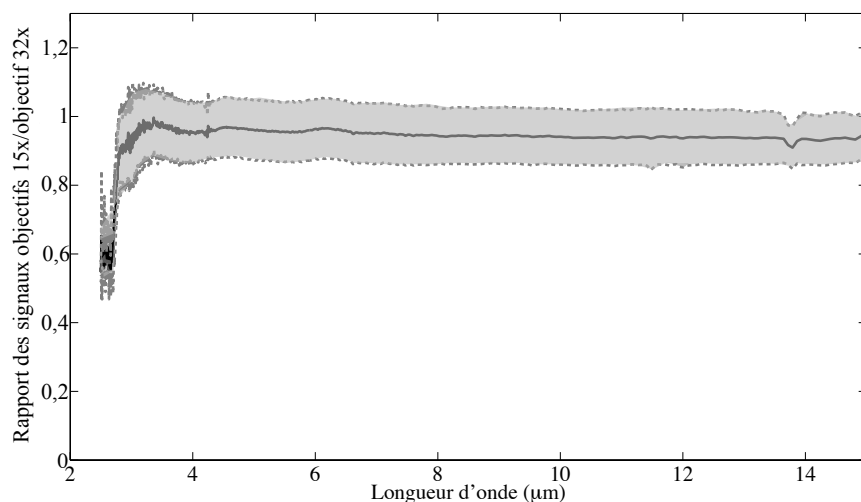


Figure 5.9 – Moyenne des rapports présentés dans la figure 5.8 (courbe pleine) avec l'écart-type correspondant (courbes en pointillés).

aussi, tout comme son image. De plus comme l'angle solide de détection Ω_{imag} dépend de la surface S_{imag} , le diaphragme détermine donc ces deux paramètres. En outre d'après l'équation (5.8) le flux détecté doit alors varier linéairement en fonction du produit $\Omega_{imag} S_{imag}$.

Cependant la figure 5.10 illustre un comportement non-linéaire contrairement à ce qui est attendu théoriquement. Ceci ne remet pas en cause notre discussion sur l'étendue du faisceau mais souligne un autre effet parasite : la non-linéarité du détecteur. Comme nous allons le voir dans la suite, cet effet a amené de nombreuses difficultés expérimentales.

5.2.5 Non-linéarité du détecteur

Un des principaux problèmes de la mesure d'émission avec notre montage expérimental est la non-linéarité du détecteur MCT qui empêche de mener des mesures radiométriques absolues. Pour l'illustrer simplement, nous avons fait deux mesures d'un corps noir chauffé à deux températures différentes, 700°C et 1100°C. Le rayonnement du corps noir est collecté par le microscope dont l'objectif a été enlevé et remplacé par un miroir parabolique recouvert d'or. Ce miroir permet de collimater le rayonnement émis vers le microscope, comme c'est le cas à la sortie de l'objectif Cassegrain (voir la photo 5.11). Les signaux mesurés sont présentés en figure 5.12. Le troisième signal S_3 est le résultat du

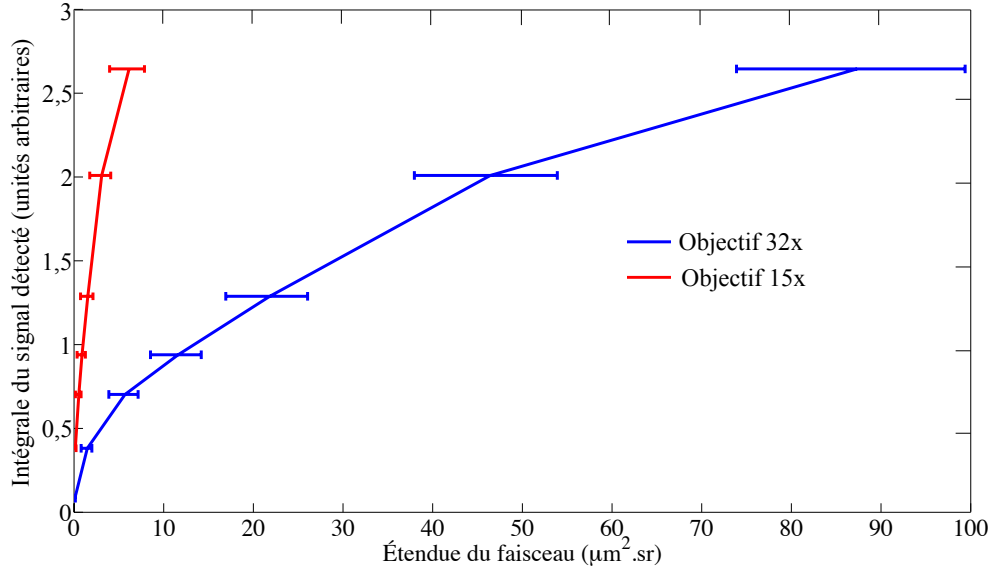


Figure 5.10 – Tracé de l'intégration du signal détecté entre 2,5 et 15 microns en fonction de l'étendue du faisceau $\Omega_{\text{imag}} S_{\text{imag}}$ délimitée par le diaphragme pour les objectifs 32x et 15x. Les incertitudes présentées prennent en compte l'erreur de mesure de la surface d'observation via le réticule du microscope.

calcul suivant :

$$S_3(\lambda) = S_1(\lambda) \frac{P(\lambda, 1100^\circ\text{C})}{P(\lambda, 700^\circ\text{C})} \quad (5.12)$$

avec S_1 le signal du corps noir à 700°C et $P(\lambda, 700^\circ\text{C})$ et $P(\lambda, 1100^\circ\text{C})$ les fonctions de Planck pour une température de 700°C et 1100°C . Le signal S_3 devrait donc être égal au signal du corps noir à 1100°C mesuré expérimentalement, si le détecteur était linéaire, or ce n'est pas le cas. Le signal mesuré est très nettement inférieur et coupe même la courbe du corps noir chauffé à 700°C à $6 \mu\text{m}$, ce qui ne devrait pas être possible théoriquement. Le choix du signal de référence (signal de corps noir) pour les mesures d'émissivité est donc critique car si l'amplitude du signal de mesure est très différente de celle du corps noir, des effets de non-linéarité du détecteur apparaissent. D'ailleurs, dans le cas de mesures de réflectivité et de transmittivité, la puissance de la source externe est ajustée pour être proche de celle de l'onde réfléchi ou transmise afin de limiter les effets de non-linéarité et d'empêcher des mesures aberrantes fournissant par exemple une transmittivité supérieure à 1.

Nous en arrivons à la grosse difficulté de cette expérience : l'étalonnage du montage expérimental. En effet non seulement les mesures d'émission doivent être calibrées avec un corps noir dont la puissance d'émission est proche de celle de l'échantillon étudié, mais aussi cet étalonnage n'est valable que si le corps noir est placé exactement au même endroit que l'échantillon, sous l'objectif. Malheureusement il n'existe pas de corps noir suffisamment compact pour être placé sous l'objectif si bien que nous avons dû réfléchir à une procédure d'étalonnage différente à l'aide d'échantillons de référence.

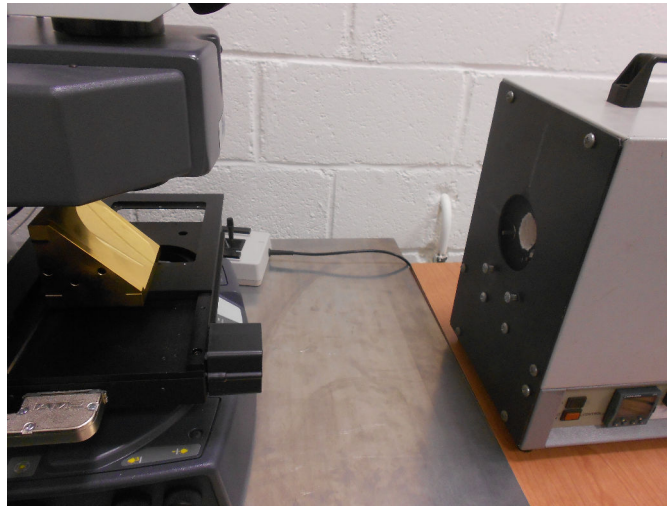


Figure 5.11 – Montage expérimental de mesure du rayonnement de corps noir par le microscope IR. L'objectif est remplacé par un miroir parabolique qui permet de collimater le faisceau envoyé par le corps noir.

5.3 Procédure d'étalonnage à l'aide d'échantillons de référence

L'objectif de la démarche est d'obtenir des signaux de référence en émission permettant de mesurer les émissivités et non uniquement des signaux d'émission plus difficilement interprétables. Pour ce faire nous avons voulu utiliser des échantillons dont nous connaissions déjà les émissivités et qui étaient suffisamment compacts pour remplacer un corps noir sous l'objectif du microscope.

Reprenons la formule (5.5) modélisant la détection du rayonnement émis par un corps noir. La figure 5.12 montre que cette formule est incomplète car elle ne prend pas en compte la dépendance de la fonction de transfert $H(\lambda)$ à la puissance du rayonnement incident. En effet si la fonction de transfert ne dépendait que de la longueur d'onde, les courbes du corps noir à 1100°C mesurées expérimentalement et calculées devraient être confondues. Ce n'est pas le cas même si les deux courbes ont une forme spectrale assez similaire, laissant ima-

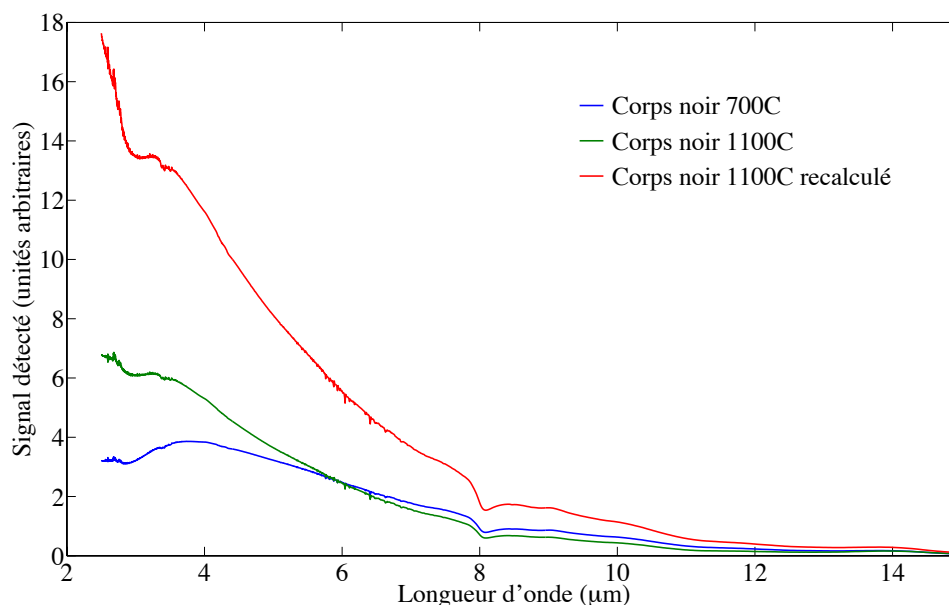


Figure 5.12 – Tracé des signaux expérimentaux d'un corps noir chauffé à 700 °C et à 1100 °C comparé au signal théorique d'un corps noir à 1100 °C calculé à partir du signal expérimental du corps noir à 700 °C.

gner un maximum proche de 2 μm , cohérent avec la loi de Wien. Ceci nous permet d'espérer un comportement prévisible de la fonction de transfert suivant la puissance incidente, qu'il suffirait ensuite de mesurer pour différentes températures d'émission avant extrapolation.

Le corps noir ne pouvant pas être placé sous l'objectif du microscope à cause de la table motorisée en $\mathbf{x} - \mathbf{y}$ non démontable, il est nécessaire d'utiliser d'autres échantillons dont l'émissivité est connue pour différentes températures. Les échantillons choisis sont une plaque de verre sodocalcique d'1 mm d'épaisseur et une plaque de verre de quartz d'1,65 mm d'épaisseur parce que leurs émissivités sont très élevées dans le domaine de longueur d'onde considéré et parce que leurs propriétés radiatives sont très proches du verre borosilicate. C'est ce type de verre qui forme les tubes utilisés pour la diffraction du PPS. Leurs émissivités ont été mesurées au laboratoire CEMHTI à Orléans pour des températures comprises entre 140 °C et 800 °C. La fonction de transfert sera alors calculée en divisant le spectre mesuré par le produit de l'émissivité et de la fonction de Planck.

Les échantillons de référence vont donc devoir être portés à la même température que lors des mesures au CEMHTI pour s'affranchir des variations

d'émissivités avec la température. Cependant cette étape n'est pas évidente car elle nécessite de mesurer la température de surface de l'échantillon. Celui-ci est déposé sur une plaque chauffante dont la température est contrôlée très précisément au dixième de degré près, en revanche la température de la surface émettant vers l'objectif n'est pas mesurée directement. Le verre étant un mauvais conducteur thermique, cette température sera différente de celle de la plaque chauffante (de quelques degrés à quelques dizaines de degrés selon la température de chauffage, comme nous le verrons par la suite). La procédure d'étalonnage doit donc aussi contenir une mesure de la température de surface. Une technique envisageable est l'utilisation de la longueur d'onde de Christiansen, pour laquelle l'émissivité du matériau considéré vaut 1. Cette fréquence ne dépend ni de la température ni de la rugosité du matériau. La température de surface est obtenue en comparant l'émission de l'échantillon à cette longueur d'onde avec celle d'un corps noir [75]. En effet en reprenant l'expression (5.1) du signal d'émission brut d'un échantillon à la longueur d'onde de Christiansen λ_C , on a :

$$S_S(\lambda_C, T_S) = H(\lambda_C)[P(\lambda_C, T_S) + B(\lambda_C)] \quad (5.13)$$

car $\varepsilon(\lambda_C, T) = 1$. Cette formule du signal d'émission est identique à l'expression (5.5) du corps noir à λ_C . Dans ce cas si $S_S(\lambda_C, T_S) = S_B(\lambda_C, T_B)$ alors $T_S = T_B$, la température de surface de l'échantillon est donc obtenue.

Le verre et la silice possèdent une longueur d'onde de Christiansen autour de $8 \mu\text{m}$. C'est cette technique qui a été utilisée au CEMHTI pour les mesures d'émissivité. Dans notre cas, le problème d'encombrement du corps noir nous empêche de l'utiliser, mais il existe deux autres possibilités : la pyrométrie bichromatique et la mesure par thermocouple. La première technique, s'appuyant sur le rayonnement émis par l'échantillon, est une mesure à distance utilisable avec le spectromètre IR, tandis que la deuxième est une mesure de contact nécessitant un autre montage expérimental. Nous avons donc privilégié la première méthode de mesure.

5.3.1 Mesure de la température de surface de l'échantillon par pyrométrie bichromatique

La pyrométrie bichromatique repose sur le rapport du flux émis par l'échantillon pour deux gammes de longueur d'onde tel que :

$$\frac{\Delta\Phi_1}{\Delta\Phi_2} = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_1+\Delta\lambda} S(\lambda_1)d\lambda}{\int_{\lambda_2}^{\lambda_2+\Delta\lambda} S(\lambda_2)d\lambda} = \frac{H(\lambda_1)\varepsilon(\lambda_1, T) \int_{\lambda_1}^{\lambda_1+\Delta\lambda} P(\lambda_1, T)d\lambda}{H(\lambda_2)\varepsilon(\lambda_2, T) \int_{\lambda_2}^{\lambda_2+\Delta\lambda} P(\lambda_2, T)d\lambda} \quad (5.14)$$

où $\Delta\Phi_1$ et $\Delta\Phi_2$ sont les flux émis pour les deux gammes de longueur d'onde $[\lambda_1, \lambda_1 + \Delta\lambda]$ et $[\lambda_2, \lambda_2 + \Delta\lambda]$, $\Delta\lambda$ étant la largeur de la bande spectrale étudiée. On assimile le rapport des flux émis au rapport des signaux détectés par

le MCT $\frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_1+\Delta\lambda} S(\lambda_1)d\lambda}{\int_{\lambda_2}^{\lambda_2+\Delta\lambda} S(\lambda_2)d\lambda}$. Cette méthode s'appuie sur plusieurs hypothèses qui seront détaillées par la suite, néanmoins elle nécessite de connaître le rapport $H(\lambda_1)/H(\lambda_2)$ que l'on cherche justement à mesurer. Or ce rapport peut être obtenu grâce à des mesures d'émission de corps noir. En effet la fonction de transfert brute n'est pas accessible car le chemin optique est différent pour un échantillon, placé sous l'objectif du microscope, et pour le corps noir où l'objectif est remplacé par un miroir parabolique. La différence entre les deux mesures sera une constante que nous ne connaissons pas, en revanche le rapport $H(\lambda_1)/H(\lambda_2)$ ne dépendra pas du chemin optique, c'est pourquoi les mesures du corps noir sont dans ce cas légitimes.

La procédure d'étalonnage comprend donc d'abord des mesures de rayonnement d'un corps noir pour déterminer le rapport de la fonction de transfert H du montage expérimental. Puis l'émission des échantillons de référence étant mesurée pour différents chauffages, la température de surface est déterminée par pyrométrie bichromatique, connaissant le rapport des H et des émissivités ϵ . Enfin nous pouvons obtenir la fonction de transfert du montage expérimental grâce aux mesures d'émission des échantillons de référence.

5.3.1.1 Choix des longueurs d'onde d'étude

Il est d'abord nécessaire de préciser la démarche utilisée pour le choix des longueurs d'onde λ_1 et λ_2 . Cette démarche va nous guider dans l'étude des fonctions de transfert et des émissivités. Reprenons l'équation (5.14). Celle-ci dépend de la température par l'intermédiaire du rapport des deux intégrales de la fonction de Planck $\frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_1+\Delta\lambda} P(\lambda_1, T)d\lambda}{\int_{\lambda_2}^{\lambda_2+\Delta\lambda} P(\lambda_2, T)d\lambda}$, rapport formant une fonction bijective de la température bien connue numériquement [110].

Le choix de λ_1 et de λ_2 résulte de considérations antagonistes. D'une part elles doivent être suffisamment différentes pour que le rapport des intégrales, pour un même $\Delta\lambda$, diffère sensiblement de 1 ; d'autre part elles doivent être suffisamment proches pour que les émissivités $\epsilon(\lambda_1, T)$ et $\epsilon(\lambda_2, T)$ ainsi que les fonctions de transfert $H(\lambda_1)$ et $H(\lambda_2)$ aient des valeurs suffisamment proches pour limiter leurs influences sur le résultat. En effet ces grandeurs sont mesurées indépendamment, avec une certaine incertitude qu'il convient de réduire au maximum, ces incertitudes s'ajoutant à l'incertitude sur la mesure de température finale.

5.3.1.2 Mesure de la fonction de transfert du montage expérimental sans objectif

Les résultats de la fonction de transfert calculée pour des mesures d'émission de corps noir sont présentés dans la figure 5.13. Il a été nécessaire de mesurer la température du corps noir T_B avec un thermomètre pour obtenir ces fonctions

de transfert selon la formule :

$$H(\lambda) = \frac{S_B(\lambda, T_B) - S_E(\lambda, T_E)}{P(\lambda, T_B) - P(\lambda, T_E)} \quad (5.15)$$

La température du corps noir a été obtenue grâce à un pyromètre Cyclops 153A de la marque Minolta Land qui a fourni des mesures de température avec une incertitude d'une dizaine de degrés. La température retenue est la moyenne des températures mesurées en différents points de l'ouverture du corps noir et en tenant compte de la variation de son émissivité comprise entre 0,98 et 1.

Les courbes de fonction de transfert obtenues pour les valeurs extrêmes de température ne sont pas indiquées à cause de leurs très faibles écarts par rapport aux courbes représentées, ce qui les rendrait invisibles sur le graphique. Ces résultats montrent que la fonction de transfert dépend bien de la puissance du rayonnement reçu par le détecteur, mais ces variations semblent suivre un comportement prévisible avec un modèle se fondant sur ces mesures. Nous reviendrons plus tard sur ce point lors de l'obtention de la fonction de transfert du montage expérimental à partir des échantillons de référence.

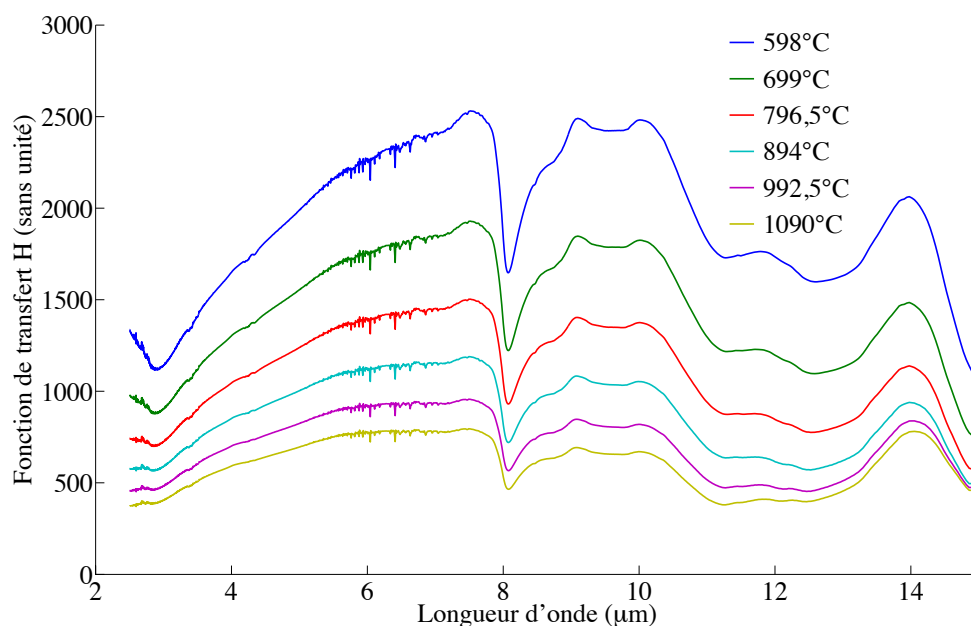


Figure 5.13 – Mesure de la fonction de transfert du dispositif microscope et spectromètre IR à partir de l'émission d'un corps noir chauffé pour des températures comprises entre 600 °C et 1100 °C.

5.3.1.3 Émissivités des échantillons de référence

Le choix des deux longueurs d'onde requiert aussi les courbes de référence d'émissivités des échantillons de verre et de silice, présentées dans les figures 5.14 et 5.15. Ces courbes de référence sont recalculées à partir des mesures au CEMHTI pour un angle d'émission de 40° . En effet au CEMHTI ce sont les émissivités normales qui ont été mesurées, or l'objectif Cassegrain collecte le rayonnement émis autour d'un angle de 40° (pour le 32x). Les résultats montrent que les variations de l'émissivité en fonction de la température peuvent être importantes (de l'ordre de 5% pour le verre sodocalcique à 50% pour le verre de quartz entre 8 et 10 μm) ou presque imperceptibles (de l'ordre de 0,5% pour les deux verres entre 5 et 8 μm). C'est donc ce dernier intervalle de fréquences qui va retenir notre attention. Les fonctions de transfert de la figure 5.13 montrent que la fenêtre spectrale entre 5 et 7 μm correspond à l'absorption du rayonnement par les molécules d'eau qui dégrade les mesures, malgré la purge. Nous avons alors choisi trois longueurs d'onde $\lambda_1 = 5,26 \mu\text{m}$, $\lambda_2 = 5,13 \mu\text{m}$ et $\lambda_3 = 5 \mu\text{m}$ (correspondant aux nombres d'onde $\sigma_1 = 1900 \text{ cm}^{-1}$, $\sigma_2 = 1950 \text{ cm}^{-1}$ et $\sigma_3 = 2000 \text{ cm}^{-1}$ car le calcul est mené en nombre d'onde) et pour un intervalle $\Delta\lambda \approx 0,025 \mu\text{m}$ ($\Delta\sigma = 10 \text{ cm}^{-1}$). La comparaison des températures obtenues pour chaque couple de longueurs d'onde permettra de savoir si la mesure est valable.

5.3.1.4 Obtention de la température de surface

Les rapport des intégrales $I_1 = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_1+\Delta\lambda} P(\lambda_1, T) d\lambda}{\int_{\lambda_2}^{\lambda_2+\Delta\lambda} P(\lambda_2, T) d\lambda}$, $I_2 = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_1+\Delta\lambda} P(\lambda_1, T) d\lambda}{\int_{\lambda_3}^{\lambda_3+\Delta\lambda} P(\lambda_3, T) d\lambda}$ et $I_3 = \frac{\int_{\lambda_2}^{\lambda_2+\Delta\lambda} P(\lambda_2, T) d\lambda}{\int_{\lambda_3}^{\lambda_3+\Delta\lambda} P(\lambda_3, T) d\lambda}$ sont présentées dans la figure 5.16. Elles ont été tracées pour des températures allant de 27°C à 627°C car la plaque chauffante utilisée pour chauffer les échantillons ne pouvait pas dépasser 600°C . Or ce rapport diffère peu de 1 (valeurs comprises entre 1 et 1,3) et surtout varie peu en fonction de la température (variation de 1% des rapports I_1 et I_3 entre 500°C et 600°C et de 2% pour le rapport I_2), ce qui peut poser problème car une incertitude de 10% sur ce rapport entraîne une variation de la température mesurée par cette méthode de plusieurs centaines de degrés (voir la figure 5.16).

Les rapports des fonctions de transferts et des émissivités pour les trois couples de longueur d'onde $[\lambda_1, \lambda_2]$, $[\lambda_1, \lambda_3]$ et $[\lambda_2, \lambda_3]$ ont été calculés pour différentes températures du corps noir, pour H , et différentes températures des échantillons de verre, pour ε , afin d'en estimer les incertitudes aux longueurs d'onde considérées. Celles-ci sont très faibles (de l'ordre de 0,1 – 0,2%) et les rapports des H et des ε quasiment égaux à 1 (à 0,05 près, au pire des cas). Cependant ces très faibles variations suffisent à provoquer une incertitude de l'ordre de 50°C sur la mesure de la température. Par exemple dans le cas d'un verre chauffé à 350°C , on obtient une température $T_{12} \in [321^\circ\text{C}, 350^\circ\text{C}]$ pour

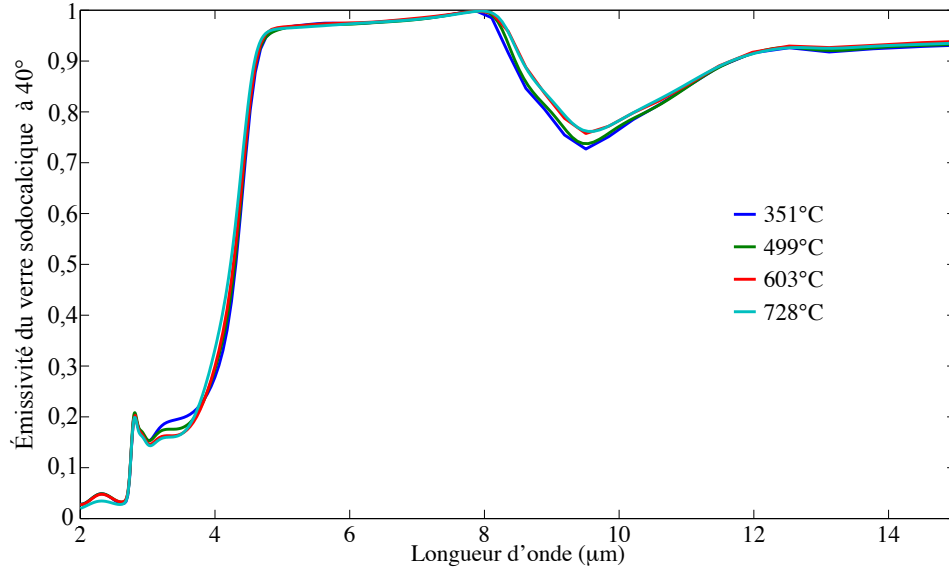


Figure 5.14 – Émissivité d'un échantillon de verre sodocalcique pour un angle d'émission de 40° en fonction de la température.

le couple (λ_1, λ_2) , $T_{13} \in [302^\circ\text{C}, 342^\circ\text{C}]$ pour (λ_1, λ_3) et $T_{23} \in [322^\circ\text{C}, 358^\circ\text{C}]$ pour le couple (λ_2, λ_3) , ce qui aboutit à une température de surface estimée entre 302°C et 350°C (et non 358°C la surface ne pouvant évidemment être plus chaude que la plaque chauffante à 350°C).

En fait cela est dû au choix de longueurs d'onde pour lesquelles la loi de Planck n'est pas pentue ; cette méthode est efficace dans la plage $[0, 6\lambda_m(T) ; 0, 9\lambda_m(T)]$ avec $\lambda_m(T)$ la longueur d'onde d'émission maximale. Pour notre expérience il faudrait donc travailler avec des longueurs d'onde plus petites (inférieures à $4 \mu\text{m}$) pour des températures d'échantillons supérieures à 350°C . Cependant pour des longueurs d'onde inférieures à $4 \mu\text{m}$, l'émissivité du verre sodocalcique et du verre de quartz (figures 5.14 et 5.15) s'effondre et la détectivité du MCT atteint son minimum (figure 4.22). De plus nous n'avons qu'une seule mesure d'émissivité de référence pour des températures inférieures à 350°C , ce qui n'est pas suffisant pour obtenir une interpolation de la fonction de transfert.

Une incertitude de 50°C sur la température de surface entraîne une incertitude de l'ordre de 25–30% sur la fonction de transfert H . Cette incertitude va ensuite se propager aux mesures d'émissivité d'autres échantillons. Il est difficile de dire si cette erreur est critique pour la détection du PPS car il n'est pas possible de la relier à la puissance du flux reçu que l'on peut estimer théoriquement

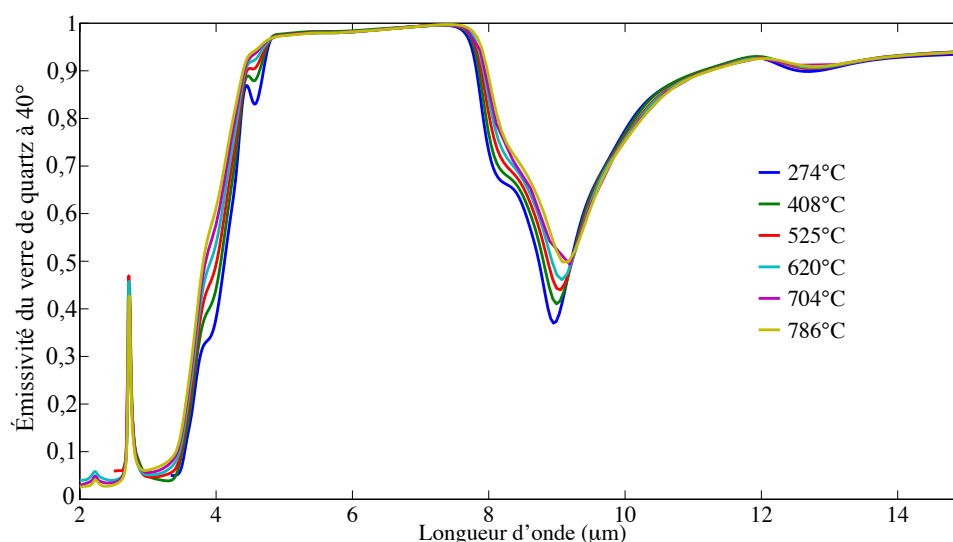


Figure 5.15 – Émissivité d'un échantillon de verre de quartz pour un angle d'émission de 40° en fonction de la température.

pour le PPS diffracté. En effet le détecteur MCT ne fournit pas de mesures radiométriques absolues. En outre cette incertitude est vouée à croître avec la température à cause de l'aplatissement des courbes correspondant à I_1 , I_2 et I_3 pour des températures plus élevées (voir la figure 5.16). Étant donné que nous cherchons par la suite à mesurer des signaux faibles (de l'ordre de quelques dizaines de nanoWatts pour l'émission d'une pointe de tube de quelques microns de diamètre), nous nous sommes aussi intéressés à la mesure de température par thermocouple. La méthode présentant les incertitudes les plus faibles entre la pyrométrie bichromatique et l'utilisation du thermocouple sera retenue pour l'étalonnage de notre montage.

5.3.2 Mesure de la température de surface de l'échantillon par thermocouple

L'utilisation du thermocouple pour mesurer la température de surface est délicate car la mesure dépend beaucoup du contact entre la pointe du thermocouple et la surface de l'échantillon. Néanmoins ce contact a été facilité par l'utilisation d'un scotch métallique (voir la figure 5.17). Le thermocouple utilisé est de type R (modèle P13R-005 de la marque Omega) avec des fils de 125 μm de dia-

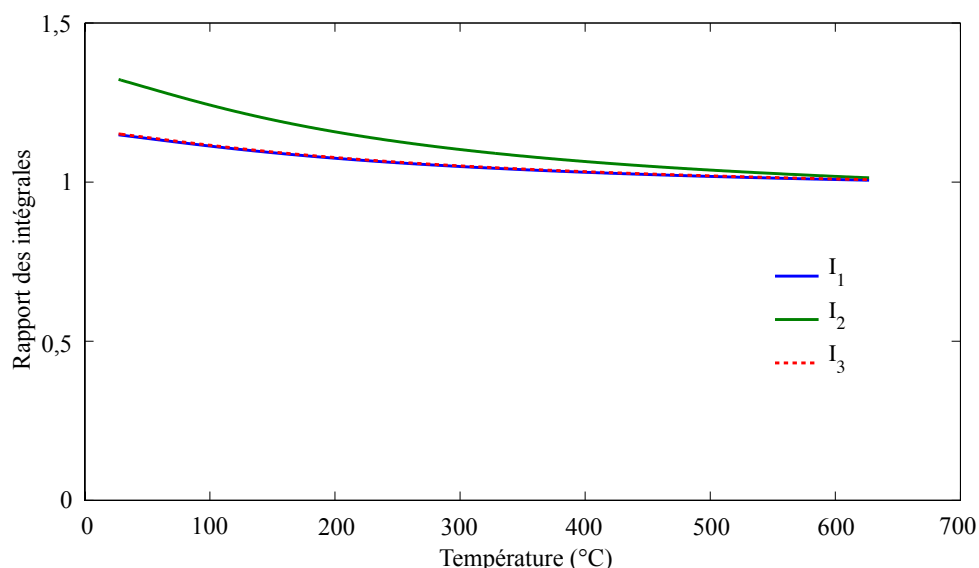


Figure 5.16 – Rapport des intégrales I_1 , I_2 et I_3 en fonction de la température.

mètre. Ces thermocouples n'ont pas une très bonne sensibilité et ont fourni des mesures avec une incertitude d'une dizaine de degrés au maximum. Un thermocouple de type K présentant une meilleure sensibilité aurait pu être utilisé mais il présente des problèmes d'hysteresis entre 200 et 600°C, zone où a été faite la majorité de nos mesures [11].

L'objectif des mesures de température est de déterminer quel est le chauffage qui produira une température de surface de l'échantillon proche de celles mesurées au CEMHTI (351°C et 499°C pour le verre sodocalcique, 273°C, 408°C et 524°C pour le verre de quartz). Un premier test de validation a été réalisé en mesurant la température de surface de la platine chauffante dont la température est déjà indiquée par le contrôleur (voir le tableau 5.1). Puis la température de surface des échantillons de verre sodocalcique et de verre de quartz a été mesurée. Les résultats sont présentés dans le tableau 5.2. L'étape de validation montre des mesures du thermocouple légèrement surestimées pour des températures inférieures à 500°C ; cet écart se réduit au-delà, mais avec une incertitude qui augmente de 3 à 8°C. Ces variations sont des fluctuations temporelles de la mesure du thermocouple en un point. En effet une fois que la platine chauffante a atteint sa température de consigne, les valeurs fournies par le thermocouple ont été notées pendant quelques minutes afin d'établir les intervalles de température fournis dans les tableaux 5.1 et 5.2.

Les mesures des températures de surface des échantillons de verre sodocalcique et de quartz présentent de plus fortes incertitudes, même aux plus faibles températures. Néanmoins nous avons pu déterminer les températures de chauffage pour lesquelles les températures de surface se rapprochaient le plus de celles des mesures de référence soit 360°C et 520°C pour le verre sodocalcique, et 283°C, 430°C et 570°C pour le quartz. Il est intéressant de remarquer que plus le chauffage augmente, plus l'écart de température entre la plaque chauffante et la surface de l'échantillon augmente, pour atteindre 40°C (verre de quartz chauffé à 570°C). Cet écart ne provient pas d'erreur de mesure du thermocouple car les mesures témoins sur la plaque chauffante n'ont pas montré d'erreur systématique entre 350 et 600°C. Les mesures de température de surface ont donc un sens car celles-ci ne peuvent pas être assimilées à la température de la plaque chauffante.

Même si les incertitudes de mesure sont de l'ordre de 10 à 15°C avec le thermocouple, elles sont plus faibles que celles obtenues avec la pyrométrie bichromatique. Nous avons donc privilégié les mesures de température de surface par thermocouple. Sachant maintenant pour quel chauffage la température de surface approche de la température des mesures de référence, nous pouvons procéder à l'obtention des fonctions de transfert avec les échantillons de verre sodocalcique et de quartz. En effet ces fonctions de transfert ne doivent pas être confondues avec celles du corps noir dans la figure 5.13 car le chemin optique du rayonnement mesuré est différent (l'objectif a été enlevé et remplacé par un miroir parabolique pour le corps noir).

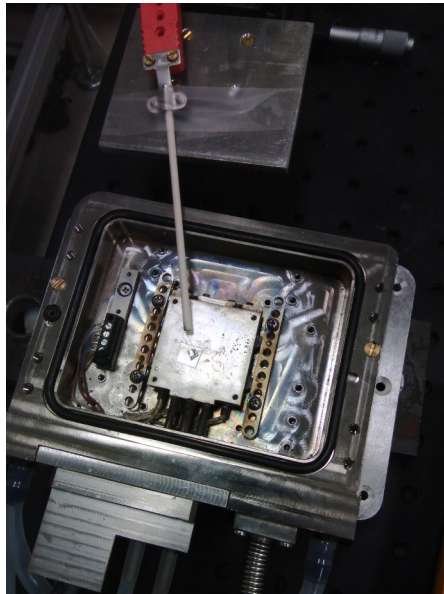


Figure 5.17 – Mesure de la température de surface d'un échantillon de verre sodocalcique par thermocouple. L'échantillon est placé sur une platine chauffante HCP622V de la marque Instec.

Température de chauffage (°C)	Température mesurée par le thermocouple (°C)
350	350-353
385	386-389
400	401-404
415	416-419
450	451-454
500	499-502
550	549-553
565	563-568
590	587-592
600	593-601

Tableau 5.1 – Mesures de la température de la plaque chauffante. Ces mesures servent d'étape de validation de la procédure car elles sont redondantes avec le contrôleur.

Température de chauffage (°C)	Température de surface du verre sodocalcique mesurée par le thermocouple (°C)
350	331-341
360	347-355
365	351-359
505	477-491
510	480-495
515	485-500
520	491-505
525	499-508
	Température de surface du verre de quartz mesurée par le thermocouple (°C)
275	263-266
280	267-272
283	271-275
405	381-386
425	401-406
430	405-411
432	407-411
530	491-500
545	498-509
565	515-525
570	515-530

Tableau 5.2 – Mesures de la température des échantillons de verre sodocalcique et de quartz.

5.3.3 Obtention de la fonction de transfert pour des échantillons de verre sodocalcique et de verre de quartz

La fonction de transfert H du montage expérimental utilisé pour les mesures de la pointe du tube est déterminée lors de cette dernière étape de la procédure d'étalonnage. La formule utilisée pour son calcul est :

$$H(\lambda) = \frac{S(\lambda)}{\varepsilon(\lambda, T)[P(\lambda, T) - P(\lambda, T_{amb})]} \quad (5.16)$$

où $S(\lambda)$ est le signal d'émission détecté après soustraction du rayonnement de fond, $\varepsilon(\lambda, T)$ l'émissivité de référence pour un angle de 40° , $P(\lambda, T)$ la fonction de Planck et T_{amb} la température ambiante. La fonction de transfert ainsi calculée ne doit pas dépendre de la nature de l'échantillon mais uniquement de la puissance du rayonnement détecté, donc indirectement de la température de la surface d'émission. Les courbes obtenues sont présentées dans la figure 5.18 : elles dépendent clairement de l'échantillon mesuré, même si l'émissivité de celui-ci est prise en compte. En effet les changements de comportement entre les fonctions de transfert calculées pour le verre sodocalcique et celles pour le verre de quartz ont lieu aux longueurs d'onde pour lesquelles les émissivités sont très différentes entre les deux échantillons. Afin d'appuyer ce propos, la figure 5.19 représente les émissivités utilisées pour le calcul des fonctions de transfert.

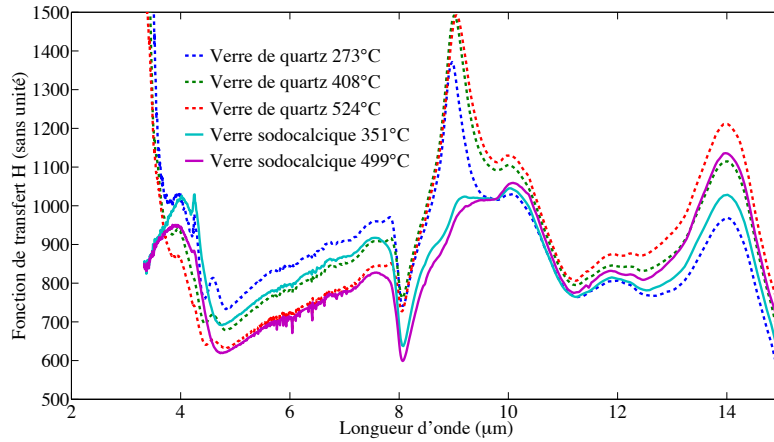


Figure 5.18 – Tracé des fonctions de transfert H obtenues à partir des signaux d'émission d'échantillons de verre sodocalcique et de verre de quartz.

Comme on pouvait s'y attendre, les courbes ne sont pas superposées (non-linéarité en puissance du détecteur). Cependant ces résultats donnent une autre

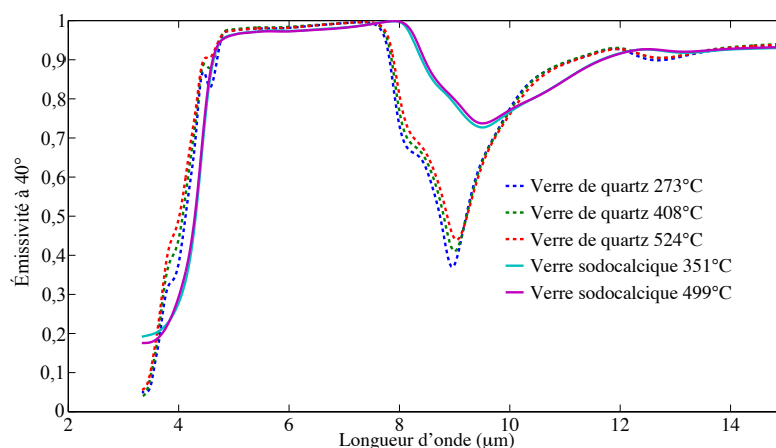


Figure 5.19 – Émissivités utilisées pour le calcul des fonctions de transfert de la figure 5.18. Les courbes représentées sont identiques à celles représentées dans les figures 5.14 et 5.15.

surprise : les fonctions de transfert se croisent. En effet les valeurs de H sont plus élevées pour les échantillons chauffés à plus faible température entre 5 et 8 μm , puis ce comportement s'inverse complètement entre 12 et 15 μm . Non seulement le détecteur MCT n'est pas linéaire en terme de puissance de flux reçu, mais en plus cette non-linéarité est différente pour chaque longueur d'onde. En effet la modélisation de l'énergie spectrale par le produit $\varepsilon(\lambda, T)[P(\lambda, T) - P(\lambda, T_{\text{amb}})]$ ne permet pas de prédire les courbes de la fonction de transfert. Son comportement devrait être indépendant du matériau utilisé pour être exploitable.

Par conséquent la procédure d'étalonnage n'est pas suffisante telle quelle. Les variations de la fonction de transfert peuvent atteindre 50% pour une longueur d'onde de 9 μm selon l'échantillon de référence utilisé. De plus comme nous le verrons par la suite, c'est autour de cette fréquence que nous avons cherché à détecter la diffraction du PPS. Or une augmentation de l'émissivité dans cette bande spectrale pourrait être interprétée comme la signature de la diffraction du PPS alors qu'elle serait probablement causée par la forte incertitude de la fonction de transfert dans cette zone. La solution serait d'utiliser un corps ayant une émissivité constante sur la gamme spectrale étudiée (corps gris) qui puisse être chauffé et placé sous l'objectif du microscope. Cependant, même avec cette précaution, les courbes de référence obtenues devront avoir une puissance d'émission proche des signaux mesurés sous peine d'avoir de nouveau des effets de non-linéarité indésirables. Pour ces raisons, en l'absence de tels corps gris, nous allons présenter des mesures d'émission du tube brutes, non calibrées par

une source de référence.

L'étude développée dans ce chapitre a fourni la méthode d'obtention de l'émissivité à partir de la seule mesure du signal d'émission d'un échantillon. En effet, une unique mesure n'est pas suffisante car la connaissance du signal du rayonnement de fond ainsi que celle d'un étalon (idéalement un corps noir) dans les mêmes conditions sont nécessaires. De plus le processus de mesure recèle de nombreux pièges à travers les artefacts énumérés dans cette partie. Le dernier effet parasite (non-linéarité du détecteur MCT) impose une procédure d'étalonnage rigoureuse qui n'a pas donné de résultats suffisamment précis avec les étalons dont nous disposons, ceux-ci devant être compacts et avoir une réponse spectrale constante sur la gamme de longueurs d'onde étudiée (corps gris). Les mesures d'émission qui seront données dans la suite de cette thèse n'ont donc pas été étalonnées, pour autant, il est toujours possible de les comparer les unes aux autres.

Chapitre 6

Résultats expérimentaux

Ce chapitre expose en détail la détection expérimentale du PPS. Tout d'abord les constantes optiques du tube ont été déterminées à partir de la mesure de réflectivité IR. Celles-ci permettent de savoir où se situe la résonance du PPS pour notre échantillon. Le protocole de mesure est ensuite présenté en insistant sur la méthode de chauffage du tube. Les résultats expérimentaux sont développés et comparés avec des simulations numériques permettant de mieux interpréter les modifications des propriétés radiatives de la pointe du tube dues, entre autres, à la diffraction du PPS.

6.1 Mesure de la constante diélectrique par réflexion IR

6.1.1 Démarche du calcul de la constante diélectrique

Les calculs théoriques présentés dans le chapitre 3.1 utilisent la constante diélectrique de SiO_2 pur. Or il existe différents types de verre avec des compositions variant selon leurs méthodes de fabrication. Divers oxydes peuvent être ajoutés en plus de SiO_2 , ce qui perturbe leurs propriétés radiatives comme le montre l'exemple des deux échantillons de référence (l'un en verre sodocalcique, l'autre en verre de quartz) dont les émissivités mesurées sont différentes (voir les figures 5.14 et 5.15). Ces deux types de verre ont des constantes diélectriques spécifiques mais tout de même proches de celle de SiO_2 pur car l'oxyde de silicium reste toujours l'oxyde majoritaire. Les tubes de verre utilisés pour la diffraction du PPS sont en verre borosilicate qui est un troisième type de verre également composé majoritairement d'oxyde de silicium. Néanmoins sa constante diélectrique nécessite d'être mesurée expérimentalement pour deux raisons. En effet même si nos calculs théoriques ont montré que la zone spectrale d'existence du PPS s'élargissait pour des nanotubes de verre, nous nous intéressons d'abord aux fréquences pour lesquelles la constante diélectrique est négative car elle contient des modes de propagation du PPS pour toutes les tailles de tube étu-

diées. D'autre part la densité d'états électromagnétiques de surface augmente énormément pour une fréquence proche de la résonance du PPS [106 et 115], ce qui assure la diffraction d'un grand nombre de modes autour de cette fréquence, même si leurs longueurs de propagation associées ne sont pas les plus importantes (voir les figures 3.24 et 3.25).

La constante diélectrique est déterminée grâce à une des relations de Kramers-Kronig appliquée à la mesure de la réflectivité spectrale. Le verre étant opaque dans la zone de fréquence étudiée (voir la figure 6.1), l'utilisation de cette méthode est légitime [30 et 97]. Une des relations de Kramers-Kronig permet de calculer le coefficient de Fresnel de réflectivité ρ , qui est une grandeur complexe, à partir de la réflectivité R , qui est une grandeur réelle. Expérimentalement nous n'avons accès qu'à R , alors que c'est le coefficient de Fresnel de réflexion ou réflectance ρ qui nous intéresse pour calculer la constante diélectrique. Ce coefficient peut être calculé à partir des données expérimentales grâce aux équations :

$$\rho = |\rho|e^{i\psi}, \quad (6.1)$$

où

$$|\rho| = \sqrt{R}, \quad (6.2)$$

et

$$\psi(\omega_c) = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \ln \left| \frac{\omega + \omega_c}{\omega - \omega_c} \right| \frac{d \ln R(\omega)^{1/2}}{d\omega} d\omega. \quad (6.3)$$

L'équation (6.3) fait partie des relations de dispersion de Kramers-Kronig [101]. Elle nécessite la connaissance de la réflectivité sur un intervalle de fréquence infini, ce qui n'est bien sûr pas accessible expérimentalement. Cependant le calcul est valable en utilisant deux interpolations, une pour les fréquences tendant vers zéro, une autre pour les fréquences tendant vers l'infini, et en ne s'intéressant qu'aux fréquences suffisamment éloignées des bords de l'intervalle de mesure. En effet la pondération en $\ln \left| \frac{\omega + \omega_c}{\omega - \omega_c} \right|$ des fréquences dans le calcul de la phase implique que ce sont principalement les valeurs de la réflectivité proches de la fréquence de calcul ω_c qui influent sur le résultat. Ainsi pour une fréquence loin des bords de notre intervalle de mesure (entre environ 2 et 15 μm) l'interpolation influera peu sur le résultat, ce qui ne sera plus le cas si on cherche à calculer la phase de la réflectance autour de 2 μm ou de 15 μm .

De plus l'utilisation de cette relation de Kramers-Kronig montre des limitations dans l'obtention des constantes optiques pour des domaines de fréquence où le coefficient d'absorption (définie comme la partie imaginaire de l'indice de réfraction) est faible. Les résultats sont alors très sensibles au bruit des spectres expérimentaux [30 et 56]. Nous nous en sommes donc tenus au calcul de la constante diélectrique uniquement autour de la zone où la partie réelle ϵ' est

négative, parce qu'elle correspond à la zone où le coefficient d'absorption du verre est le plus élevé et parce que c'est aussi là que se situe la résonance du PPS. Il nous reste maintenant à faire le lien entre la réflectance et la constante diélectrique, ce qui nécessite de connaître la polarisation du rayonnement utilisé ainsi que son angle d'incidence. Pour ce faire nous allons détailler le montage expérimental.

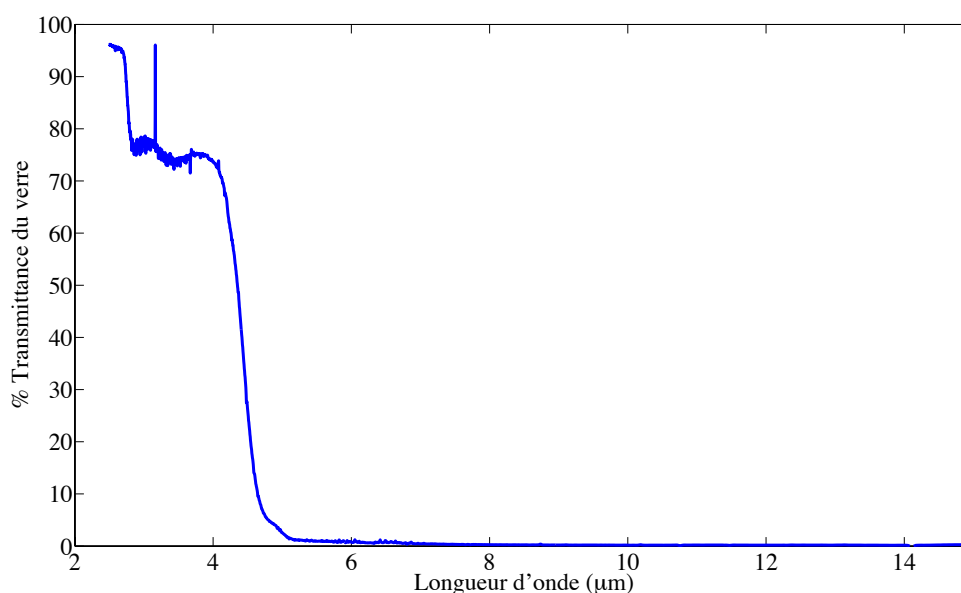


Figure 6.1 — Transmittance d'une plaque de verre sodocalcique d'un millimètre d'épaisseur.

La mesure de la réflectivité est réalisée avec les mêmes appareils (spectromètre et microscope IR) mais avec un chemin optique différent. Lors de l'utilisation en émission, le signal provient du microscope, arrive dans le spectromètre où il est modulé par l'interféromètre, avant d'être détecté par le MCT. Pour une utilisation du montage en réflexion, le signal provient du spectromètre. En effet il est nécessaire d'utiliser une source externe qui, dans notre cas, est une source globalbar (source à base de carbure de silicium), chauffée à 1107°C (1380K) et située dans le spectromètre. Le signal émis par cette source est collimaté par un miroir parabolique qui l'envoie dans l'interféromètre. Puis en sortie de l'interféromètre un miroir plan réfléchit le rayonnement vers le microscope (le périscope faisant la liaison entre le microscope et le spectromètre dans le cas de l'émission est ici supprimé). Le rayon lumineux suit ensuite le même trajet que pour l'expérience d'émission mais en sens inverse. L'objectif Cassegrain permet la réflexion

sur la zone d'observation pour un angle de $35,5^\circ$ ou de $40,5^\circ$ suivant l'objectif utilisé. Puis le rayon réfléchi reprend le même trajet jusqu'à un miroir qui le renvoie à un autre détecteur MCT situé dans le microscope comme le montre le schéma 6.2. La polarisation du rayonnement à la sortie de l'interféromètre est 56% transverse électrique et 44% transverse magnétique, cette proportion varie de plus ou moins 1% au niveau de l'objectif (données fournies par Thermo Fisher Scientific). Le coefficient de réflexion ρ obtenu dans notre expérience correspond à celui d'une onde polarisée partiellement transverse électrique et partiellement transverse magnétique pour un angle d'incidence non normal.

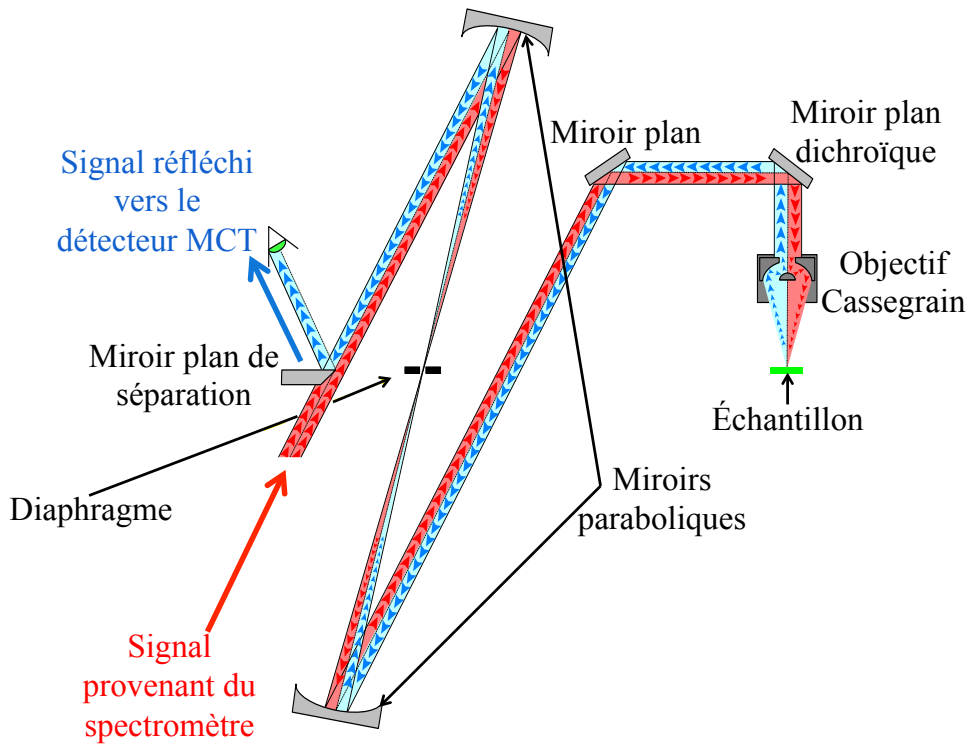


Figure 6.2 – Schéma optique du microscope infrarouge *Continuum* en mode réflexion. L'ajout du miroir séparateur par rapport au mode émission permet de renvoyer le faisceau réfléchi vers le détecteur MCT interne au microscope (données fournies par Thermo Fisher Scientific).

Les formules de Fresnel donnant la réflectance pour une onde réfléchie de polarisation transverse électrique ρ_{TE} ou transverse magnétique ρ_{TM} sont :

$$\rho_{TE} = \frac{n_1 \cos \phi_1 - n_2 \cos \phi_2}{n_1 \cos \phi_1 + n_2 \cos \phi_2} \quad (6.4)$$

et

$$\rho_{TM} = \frac{n_2 \cos \phi_1 - n_1 \cos \phi_2}{n_2 \cos \phi_1 + n_1 \cos \phi_2} \quad (6.5)$$

avec n_1 et n_2 les indices de réfraction des milieux 1 et 2, ϕ_1 l'angle d'incidence dans le milieu 1 et ϕ_2 l'angle de réfraction dans le milieu 2 (voir le schéma 6.3). On considère ici une interface air-verre donc $n_1 = 1$. En utilisant la loi de Snell-Descartes $n_1 \sin \phi_1 = n_2 \sin \phi_2$ et la relation entre la constante diélectrique et l'indice de réfraction : $\epsilon_2 = n_2^2$, les réflectances ρ_{TE} et ρ_{TM} s'écrivent :

$$\rho_{TE} = \frac{\cos \phi_1 - \sqrt{\epsilon_2 - (\sin \phi_1)^2}}{\cos \phi_1 + \sqrt{\epsilon_2 - (\sin \phi_1)^2}} \quad (6.6)$$

et

$$\rho_{TM} = \frac{\epsilon_2 \cos \phi_1 - \sqrt{\epsilon_2 - (\sin \phi_1)^2}}{\epsilon_2 \cos \phi_1 + \sqrt{\epsilon_2 - (\sin \phi_1)^2}}. \quad (6.7)$$

Pour notre expérience, la réflectance totale théorique est donc :

$$\rho_{theo} = 0,56 \rho_{TE} + 0,44 \rho_{TM}. \quad (6.8)$$

L'équation à résoudre pour chaque fréquence est :

$$\rho_{theo} = \rho_{KK} \quad (6.9)$$

avec ρ_{KK} la réflectance calculée à partir des équations (6.2) et (6.3). Cette équation a pour inconnue la constante diélectrique complexe du verre ϵ_2 , notée ϵ par simplicité dans la suite de ce chapitre.

Pour la résolution numérique, l'interpolation à basses et hautes fréquences des données expérimentales pour le calcul de la phase ψ de ρ_{KK} a été faite à l'aide d'Origin en utilisant cinq fonctions lorentziennes. Puis l'équation (6.9) a été résolue par Mathematica. Deux échantillons plans ont été analysés afin de valider la procédure : il s'agit d'un échantillon de verre de quartz et un autre de verre sodocalcique comme pour les mesures de référence d'émissivité. Enfin la réflectivité d'un tube en verre borosilicate avant étirement a été mesurée pour déterminer la constante diélectrique de ce verre et surtout la fréquence de résonance du PPS pour ce matériau.

6.1.2 Permittivité diélectrique déterminée pour des échantillons de verre plans

Le premier échantillon de verre de quartz contient 99,9% d'oxyde de silicium (donnée fournie par la compagnie Goodfellow), si bien que le calcul de sa constante diélectrique peut être comparé avec les données fournies par Palik pour du verre de quartz [91]. Les résultats comportent d'abord un tracé de l'amplitude et de la phase de la réflectance (figure 6.4), puis de la permittivité diélectrique (parties réelle et imaginaire) en fonction de la fréquence (figure 6.5). Les fréquences sont exprimées en μm^{-1} sachant que $1 \mu\text{m}^{-1}$ correspond à une longueur d'onde de $6,3 \mu\text{m}$. L'amplitude de la réflectance est égale aux résultats expérimentaux à une racine carrée près. Pour comparaison, la permittivité

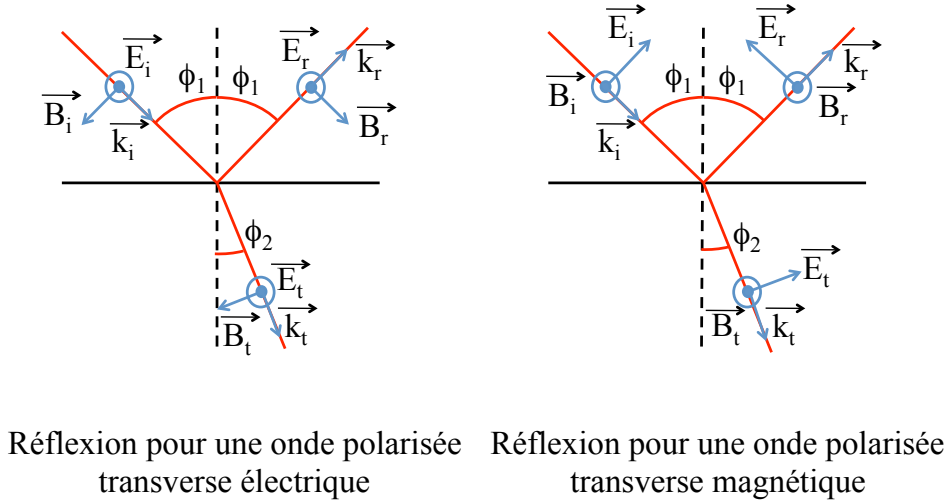


Figure 6.3 — Schéma des réflexions d'onde polarisée transverse électrique ou transverse magnétique pour un angle d'incidence quelconque.

diélectrique et la réflectance du verre de quartz calculées à partir des constantes optiques répertoriées par Palik, sont présentées sur les mêmes figures. L'accord entre les courbes de l'échantillon analysé et celles de Palik est bon, voire excellent, pour l'amplitude de la réflectance où les courbes sont superposées. Les courbes de la constante diélectrique montrent un faible décalage en fréquence de la résonance dont l'amplitude augmente pour nos mesures par rapport à celles référencées par Palik. Néanmoins l'écart diminue et même disparaît lorsque l'on s'éloigne de cette résonance à plus faible ou plus haute fréquence, ce qui nous permet d'avoir confiance dans nos mesures. En effet les écarts mesurés au niveau de la résonance sont de l'ordre de 30% au maximum, ce qui peut être imputé à la faible différence de composition entre le verre de quartz utilisé et celui référencé, et à la difficulté de mesure dans la zone de résonance. Nous considérons donc que cette étape préliminaire valide notre démarche pour les échantillons suivants.

L'influence de l'ajout d'oxydes différents dans la composition du verre sur la constante diélectrique de celui-ci a pu être analysée lors de l'étude de la réflectivité d'une plaque de verre sodocalcique. Nous ne connaissons pas la composition exacte de notre échantillon, mais sa teneur en oxyde de silicium se situe aux alentours de 70% [68]. Les résultats de l'expérience sont présentés dans les fi-

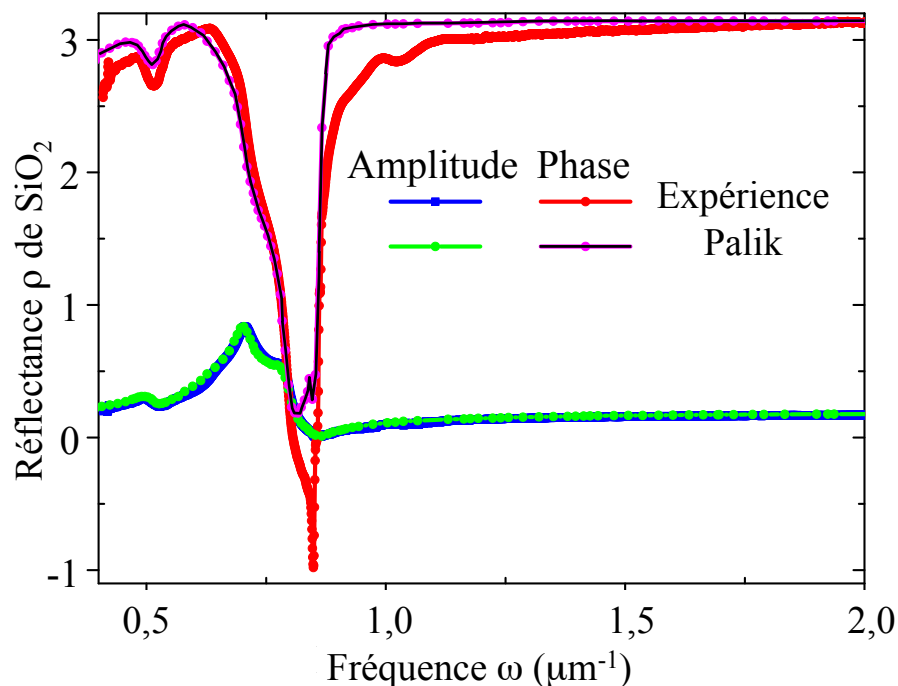


Figure 6.4 – Tracés de l’amplitude et de la phase de la réflectance du verre de quartz obtenues expérimentalement (courbes bleue et rouge) comparés aux courbes calculées à partir des constantes optiques répertoriées par Palik [91] (courbes verte et rose).

gures 6.6 et 6.7. Par rapport au verre de quartz, la résonance de la constante diélectrique est décalée en fréquence (le pic négatif de la partie réelle est situé à $\omega = 0,67 \mu\text{m}^{-1}$, soit une longueur d’onde $\lambda = 9,36 \mu\text{m}$ pour le verre sodocalcique, contre $\omega = 0,7 \mu\text{m}^{-1}$, soit une longueur d’onde $\lambda = 9 \mu\text{m}$ pour le verre de quartz). En outre, cette résonance a été fortement atténuée, surtout pour le pic négatif de ϵ' qui est devenu six fois plus faible que celui du verre de quartz, tandis que les autres pics (pic positif de ϵ' et pic de ϵ'') ne sont que deux fois inférieurs à ceux de la figure 6.5.

L’ajout d’oxydes supplémentaires dans la composition des verres modifie donc fortement leurs permittivités diélectriques, et même si la présence de PPS n’est pas remise en cause à cause de son élargissement spectral pour des matériaux à fortes pertes diélectriques, on s’attend à ce que la fréquence de résonance du PPS soit différente de celle calculée à partir des données de Palik pour le verre borosilicate. C’est pourquoi nous avons ensuite mesuré la réflectivité d’un tube de verre borosilicate afin de déterminer sa constante diélectrique.

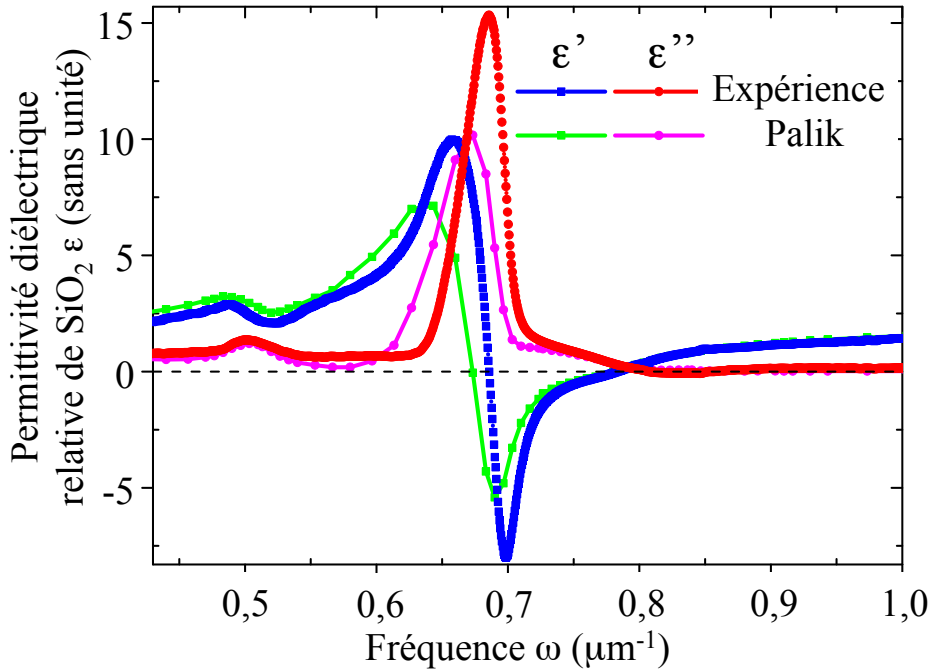


Figure 6.5 — Tracés des parties réelle (ϵ') et imaginaire (ϵ'') de la permittivité du verre de quartz obtenues expérimentalement (courbes bleue et rouge) comparés aux courbes calculées à partir des constantes optiques répertoriées par Palik [91] (courbes verte et rose).

6.1.3 Permittivité diélectrique déterminée pour un tube en verre borosilicate

La réflectivité est mesurée pour un tube non étiré d'un millimètre de diamètre et dont les parois font $125\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. La mesure n'est pas faite sur une partie étirée pour deux raisons : pouvoir assimiler la surface observée à un plan et avoir une épaisseur des parois suffisamment importante pour qu'il soit encore opaque (pour des épaisseurs de l'ordre de la dizaine de microns le verre commence à devenir semi-transparent). En effet si le verre devient semi-transparent, il faut prendre en compte les effets d'interférences dues aux réflexions multiples dans la paroi. La réflectivité mesurée pour le tube présente deux minima à $0,8$ et $0,95\ \mu\text{m}^{-1}$ (voir la figure 6.8), ce qui n'avait pas été mesuré pour les plaques de verre de quartz et sodocalcique. Ceci montre que la constante diélectrique est légèrement différente pour ce type de verre. En effet la réflectivité (et donc la réflectance) tend vers zéro lorsque la constante diélectrique tend vers 1 signifiant que le rayon se propage à l'interface air/verre sans subir les effets du changement d'indice (réflexion/réfraction). Néanmoins l'apparition de deux fréquences pour lesquelles la réflectivité tend vers zéro n'est pas due à des réflexions multiples

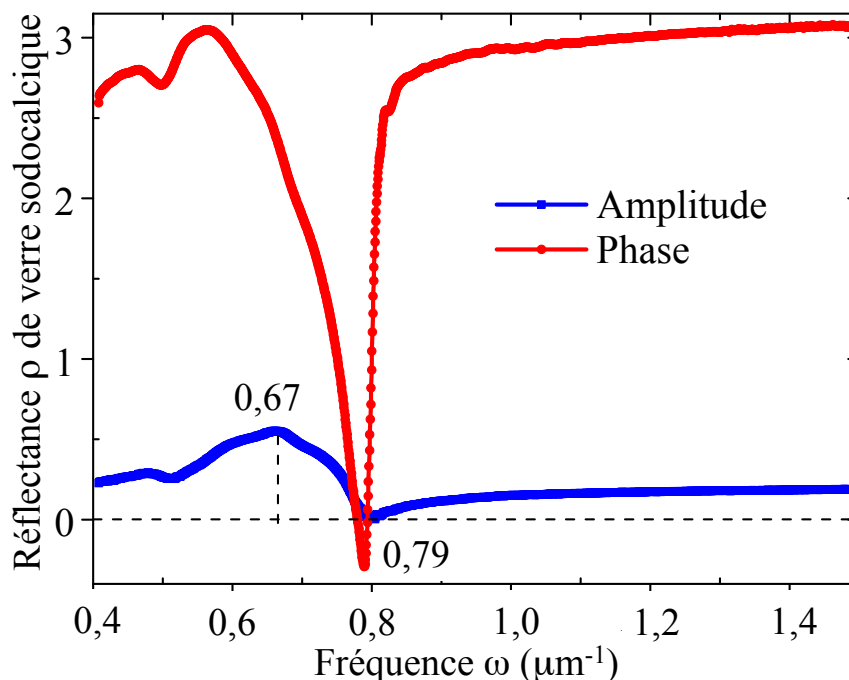


Figure 6.6 — Tracés de l'amplitude et de la phase de la réflectance du verre sodocalcique obtenues expérimentalement.

qui entraîneraient des interférences destructrices, car le verre est encore opaque pour des épaisseurs de l'ordre de la centaine de micromètres.

Les résultats de la permittivité diélectrique du tube sont présentés dans la figure 6.9 et en comparaison avec les résultats de Palik dans la figure 6.10. La fréquence de résonance du pic négatif est peu décalée par rapport aux données référencées par Palik, cependant la résonance reste fortement atténuée, comme pour le verre sodocalcique, avec une atténuation plus forte pour le pic négatif de ϵ' que pour les pics positifs de ϵ' et ϵ'' . Comme pour le verre de quartz et le verre sodocalcique, les fréquences des deux minima de réflexion correspondent à des valeurs de ϵ' proches de 1 et où la composante imaginaire ϵ'' est proche de zéro. Ces variations du spectre de la réflectivité sont probablement dues à l'inclusion d'oxydes tels que l'oxyde de bore qui ne sont pas présents dans les deux types de verre précédents. Nous pouvons donc concentrer notre attention sur la zone de fréquence comprise entre $0,65$ et $0,75 \mu\text{m}^{-1}$ (c'est-à-dire entre $8,4$ et $9,7 \mu\text{m}$) lors des mesures d'émission de la pointe de tube pour détecter une diffraction de PPS plus intense.

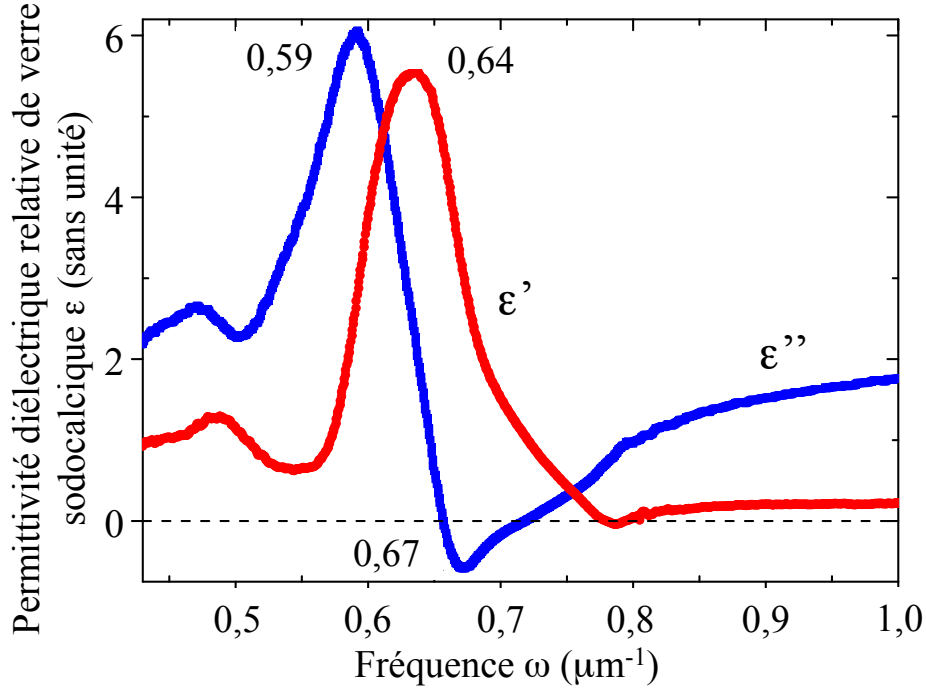


Figure 6.7 – Tracés des parties réelle (ϵ') et imaginaire (ϵ'') de la permittivité du verre sodocalcique obtenues expérimentalement.

6.2 Mesure de l'émission du tube en verre

6.2.1 Choix des caractéristiques de l'échantillon

Pour mémoire les conclusions de l'étude théorique au chapitre 3.1 et des simulations FDTD dans la partie 4.2 nous ont amené à choisir de fabriquer des tubes avec des parois les plus fines possibles et un diamètre le plus petit possible. Une exaltation de la propagation des PPS a en effet été démontrée pour un diamètre inférieur à 300 nm, et cet effet s'accroît pour des parois plus fines à un diamètre fixé (voir la figure 3.10). Comme lors de l'étirement le rapport diamètre intérieur sur diamètre extérieur a/b reste constant, nous avons privilégié les tubes ayant les parois les plus fines avant étirement, d'ailleurs ceux-ci possèdent un rapport $a/b = 0,75$ (valeur fixe des échantillons de tubes fournis par Sutter Instrument). Cependant nous n'avons pas cherché à obtenir un diamètre de pointe le plus petit possible avec la micro-étireuse (de l'ordre de 100 nm) car dans ce cas la partie conique est très longue (1 cm), ce qui pose des problèmes pratiques de chauffage. En effet la résistance thermique du tube de verre va augmenter à cause de la diminution de sa section. Les travaux préliminaires de Tokunaga *et al.* ont montré que la température d'une pointe de tube de diamètre de l'ordre de 1 μm ne dépassait pas 100°C pour un chauffage

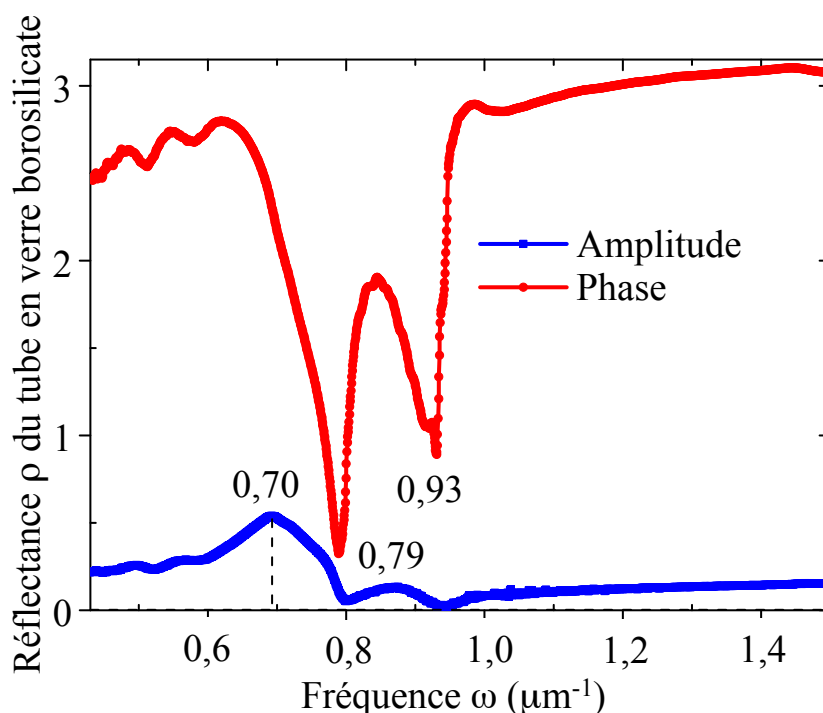


Figure 6.8 – Tracés de l'amplitude et de la phase de la réflectance du tube en verre borosilicate obtenues expérimentalement.

à 300°C à 1 millimètre de la pointe [112].

Cependant en raccourcissant la taille de la partie conique, le diamètre de la pointe est également réduit. Cela pose alors problème pour la puissance théorique du PPS diffracté que l'on estime, dans le cas d'une pointe à 600°C, à 3,1 nW pour un diamètre de 1 millimètre, à 17,4 nW pour 5 μm et 58,2 nW pour 1 μm . Ces estimations ne prennent pas en compte le reste de l'émission des ondes radiatives, la composante due au PPS seul est isolée. Il a donc fallu trouver un compromis entre la faible taille de la pointe qui permet d'avoir une puissance du PPS élevée et la taille de la partie conique qui introduit de fortes pertes thermiques. C'est pourquoi nous avons choisi d'utiliser des tubes dont la partie conique mesure entre 5 et 7 millimètres et dont la pointe possède un diamètre compris entre 0,9 et 0,5 μm . Ces valeurs sont fournies par la micro-étireuse à partir d'un programme pré-enregistré utilisé pour étirer nos échantillons. Des photos de la pointe d'un tube obtenues par microscopie optique sont présentées dans la figure 6.11. Avant de présenter les mesures d'émission du tube de verre, expliquons la méthode de chauffage qui a été retenue.

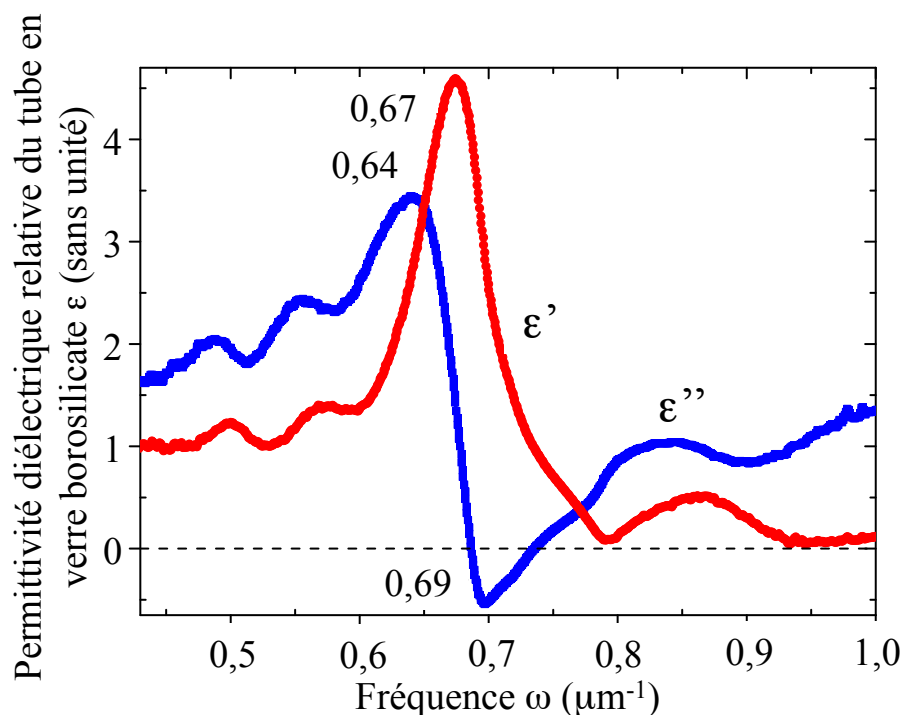


Figure 6.9 – Tracés des parties réelle (ϵ') et imaginaire (ϵ'') de la permittivité du tube en verre borosilicate obtenues expérimentalement.

6.2.2 Méthode de chauffage du tube en verre

Le chauffage du tube est une opération délicate : le verre n'est pas un bon conducteur thermique et la résistance thermique du tube augmente d'autant plus que sa section est petite. En outre, le signal émis par la pointe est très faible (de l'ordre de 10 nW pour une pointe de 1 μm de diamètre sans compter le PPS à comparer aux 400 pW de la puissance minimale détectée) si bien que des effets parasites, comme le chauffage des optiques précédemment évoqué, doivent être pris en compte pour que la mesure soit pertinente. La solution de la plaque chauffante n'a pas été retenue pour deux raisons : sa mauvaise efficacité pour chauffer la pointe du tube, la source de chaleur étant très éloignée de la pointe, et le fort chauffage de l'objectif qu'il induit. En effet le tube doit être chauffé dans un environnement le plus froid possible pour limiter les effets parasites, comme nous l'avons évoqué.

Le chauffage par laser permet de réaliser cette condition. La focalisation du rayon à la base de la partie conique du tube facilite son chauffage au plus près de la pointe. Cependant le verre est transparent dans le visible, ce qui empêche d'utiliser des lasers visibles pour un tube tel quel. Le laser CO_2 dont la longueur d'onde est centrée autour de 10 μm est une option intéressante car le verre absorbe fortement le rayonnement dans cette gamme de longueur

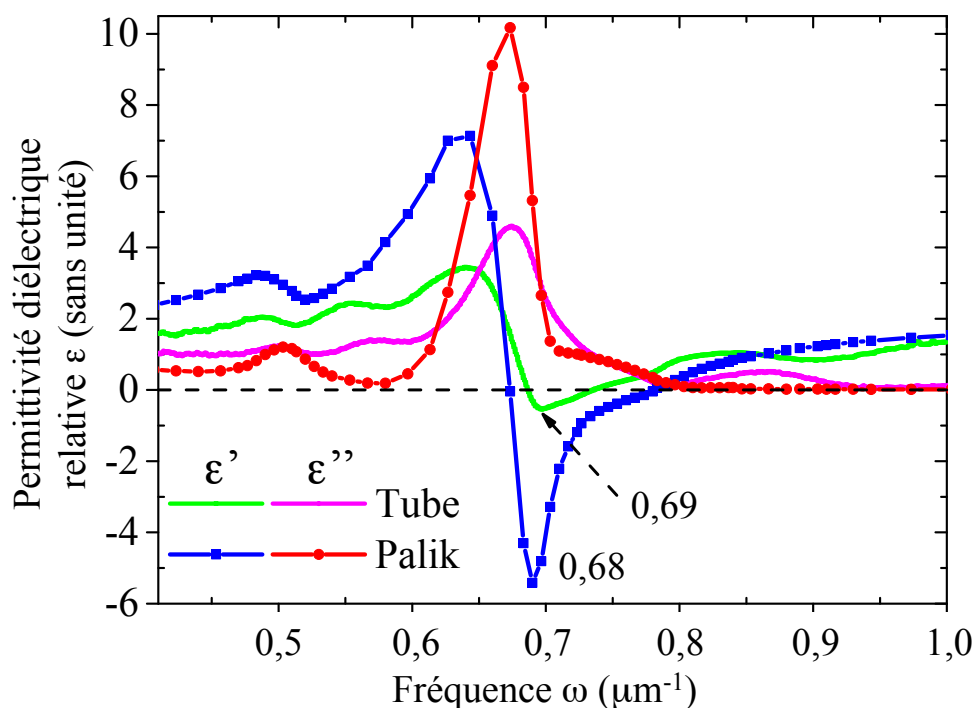


Figure 6.10 – Comparaison des parties réelle (ϵ') et imaginaire (ϵ'') de la permittivité diélectrique entre le verre borosilicate et les valeurs référencées par Palik. La résonance de ϵ diminue très nettement pour le verre borosilicate par rapport à un verre de SiO_2 pur sans décalage important de la fréquence de résonance.

d'onde. Cependant son utilisation n'est pas simple et le MCT détecterait aussi la réflexion du rayonnement sur le tube qui serait collecté par l'objectif. Cette option est toujours possible, mais nous en avons choisi une autre, plus simple : recouvrir la base du tube d'une mince couche métallique puis de focaliser dessus, à l'aide d'une lentille convergente, un laser continu dont la puissance maximale atteint 1 Watt. La couche mince métallique permet d'absorber le rayonnement laser qui chauffe la couche mince et le tube. C'est une couche mince de cuivre de 500 nm d'épaisseur qui a été déposée par thermoévaporation sous vide sur les tubes en verre (figure 6.12). Le dépôt n'a lieu que jusqu'à la base de la partie conique, le reste de la partie étirée incluant la pointe reste vierge de tout dépôt, ce qui assure de ne mesurer que l'émission du verre et non celle de la couche de cuivre en plus. La figure 6.13 illustre l'expérience de mesure d'émission de la pointe du tube en verre.

6.2.3 Détection de l'émission du tube

Après étirement il est possible de mesurer le diamètre de la pointe du tube à l'aide d'un microscope optique (les photos d'un échantillon sont présentées dans

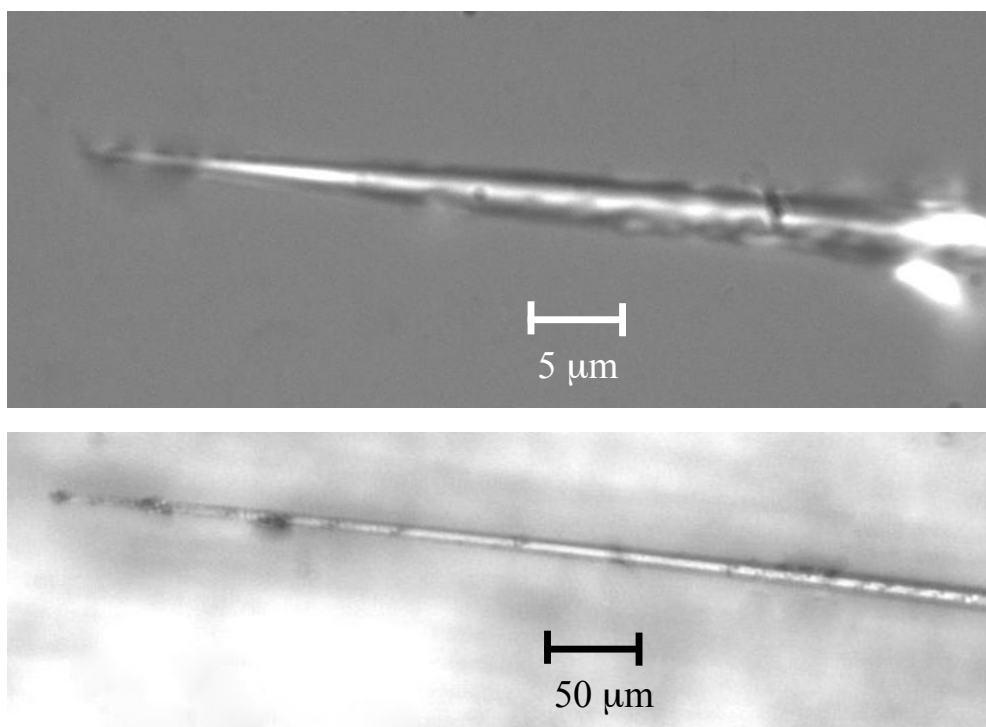
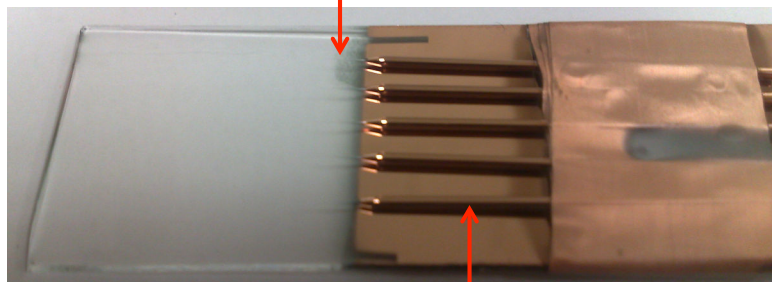


Figure 6.11 – Photos d’une pointe de microtube de diamètre $0,8 - 0,9 \mu\text{m}$ au microscope optique. La même pointe a été observée avec un objectif de grossissement 5 (photo du bas) et avec un objectif de grossissement 50 (photo du haut).

la figure 6.11). Cependant ce microscope est différent du microscope IR utilisé pour collecter l’émission du tube. En effet le microscope Continuum n’est pas aussi précis car il est limité à des observations pour des tailles de l’ordre de $5 \mu\text{m}$ (écart entre deux graduations du réticule de l’oculaire) si bien qu’il ne nous a pas été possible de mesurer précisément les tailles des pointes dont nous collectons l’émission. Nous avons seulement pu nous assurer qu’elles étaient de l’ordre de $1 \mu\text{m}$.

Les deux objectifs Cassegrain dont nous disposons (15x et 32x) ne collectent le rayonnement que pour des angles compris respectivement entre 26 et 44° (pour le 15x) et entre 30 et 51° (pour le 32x) par rapport à la normale. Étant donné que le PPS est diffracté selon l’axe du tube avec une ouverture angulaire de l’ordre de 20° (résultats de la partie 4.2), il est nécessaire de bien orienter le tube afin que l’émission du PPS soit captée par l’objectif. C’est pourquoi les tubes sont inclinés avec un angle de 35° par rapport à la normale, ce qui permet de mesurer leurs émissions pour les objectifs 15x et 32x (voir la figure 6.14). Dans la suite, les mesures présentées ont été réalisées avec l’objectif 32x qui offre un meilleur grossissement et permet une visualisation plus facile de la pointe à l’oculaire.

Partie non recouverte de cuivre
(moitié de la partie conique jusqu'à l'extrémité)



Partie recouverte de cuivre
(base du tube – moitié de la partie conique)

Figure 6.12 – Photo de microtubes dont le diamètre de la pointe est compris entre $0,5$ et $0,9\ \mu\text{m}$. La partie conique mesure entre 5 et 7 millimètres. Le dépôt de cuivre absorbe le rayonnement du laser visible, chauffant ainsi le reste du tube. L'extrémité de la pointe a été cachée lors de la thermoévaporation pour y empêcher le dépôt permettant ensuite de n'observer au microscope que l'émission du verre et non, en plus, celle du cuivre.

L'expérience de mesure d'émission du tube en verre est schématisée dans la figure 6.15. Le signal est mesuré d'abord pour une section du tube large d'environ $300\ \mu\text{m}$ (dépassant très largement la surface détectée par l'objectif), puis la zone de détection est rapprochée de plus en plus de la pointe du tube avec une section détectée qui diminue. À chaque mesure, le laser est refocalisé sur la partie cuivrée à pleine puissance car c'est l'échantillon qui est déplacé sous l'échantillon. Le rayon laser focalisé fait fondre partiellement le tube (voir la figure 6.14). Au niveau du point d'impact la température du tube est donc proche de 800°C , point de ramollissement du verre borosilicate utilisé. Les signaux d'émission mesurés sont présentés dans la figure 6.16. Les signaux bruts montrent une diminution du signal lorsque la section du tube diminue, ce qui est rassurant. Cependant il est difficile de se rendre compte des modifications spectrales de l'émission du tube sans normalisation des courbes, en effet pour des épaisseurs inférieures à $10\ \mu\text{m}$, le verre commence à devenir semi-transparent et son émissivité est alors modifiée. La normalisation des courbes a été faite à la longueur d'onde $7,8\ \mu\text{m}$, correspondant à une réflectivité nulle du verre boro-

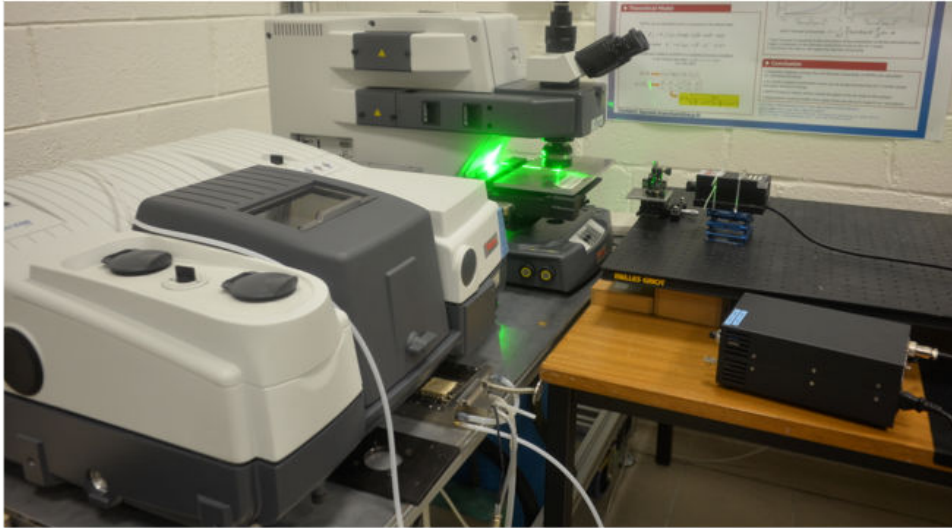


Figure 6.13 – Montage expérimental de chauffage par laser d'un tube en verre partiellement recouvert d'une couche de cuivre. L'objectif du microscope est focalisé sur la pointe du tube vierge de dépôt où se produit la diffraction du PPS.

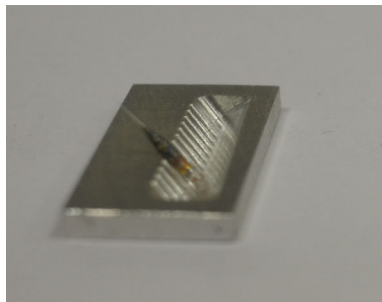


Figure 6.14 – Photo du support-échantillon permettant d'incliner la pointe du tube avec un angle de 35° par rapport à la normale. La partie noircie du tube étiré correspond à la zone de la couche de cuivre chauffée par le laser. Les points de focalisation du rayon sont visibles dans cette partie à cause des trous qu'ils forment à travers le tube.

silicate (voir la figure 6.9) donc à une émissivité maximale lorsqu'il est opaque. Ce choix est arbitraire, mais il permet de mieux visualiser les modifications des propriétés radiatives lorsque l'on se rapproche de la pointe notamment entre

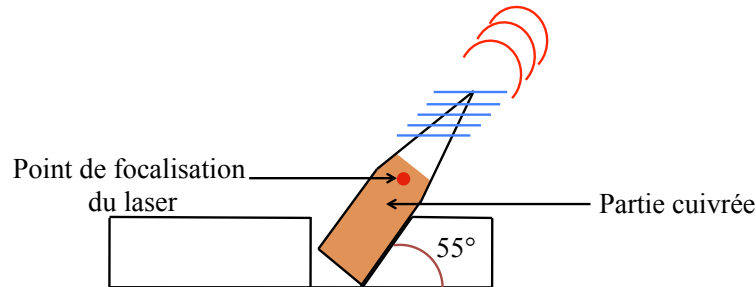


Figure 6.15 – Schéma de l'expérience de chauffage et de mesure de l'émission du tube en verre. Les plans successifs de focalisation de l'objectif sont présentés en bleu.

8,4 et 9,7 μm .

La figure 6.16 montre que, lorsque la section du tube passe de 200 μm à 100 μm , le spectre est très fortement modifié entre 4 et 7 μm , ces changements ne sont pas aussi brusques quand la section du tube diminue de 300 μm à 200 μm de diamètre. Cela peut s'expliquer par l'épaisseur des parois du tube qui est de l'ordre de 40 μm pour la section de 300 μm , entre 10 et 15 μm pour celle de 200 μm et enfin entre 5 et 10 μm pour celle de 100 μm . Les modifications des propriétés radiatives du verre sont visibles lorsque l'épaisseur des parois diminue en-dessous de 10 μm . Le changement est plus flagrant pour les sections plus petites où l'épaisseur des parois atteint le micron voire la centaine de nanomètres.

En observant plus précisément la zone située entre 8,4 et 9,7 μm dans la figure 6.16 cas (c), les mesures d'émission proches de la pointe indiquent une modification du signal pour les sections inférieures à 25 μm avec un pic élargi entre 8,2 et 9,7 μm . Celui-ci pourrait être très probablement dû à la diffraction de PPS, cependant plusieurs questions demeurent au sujet de cette mesure.

Ce pic élargi n'apparaît pas que pour une focalisation sur la pointe mais aussi pour un diamètre de 25 à 2 μm , ce qui pose la question de la profondeur de champ en z de l'objectif dans l'infrarouge. En effet l'objectif collecte le signal dans une zone autour du plan de focalisation, qui a une extension non nulle dans la direction perpendiculaire à ce plan, cette extension étant de l'ordre de 20 μm . Ceci pourrait expliquer la mesure de ce pic à un endroit différent de la pointe du tube. Théoriquement, on s'attendrait aussi à mesurer une puissance du PPS diffracté plus importante que le rayonnement du tube, assimilé à un corps noir (14 nW contre 60 nW pour le PPS diffracté avec une pointe de diamètre 1 μm à 600°C).

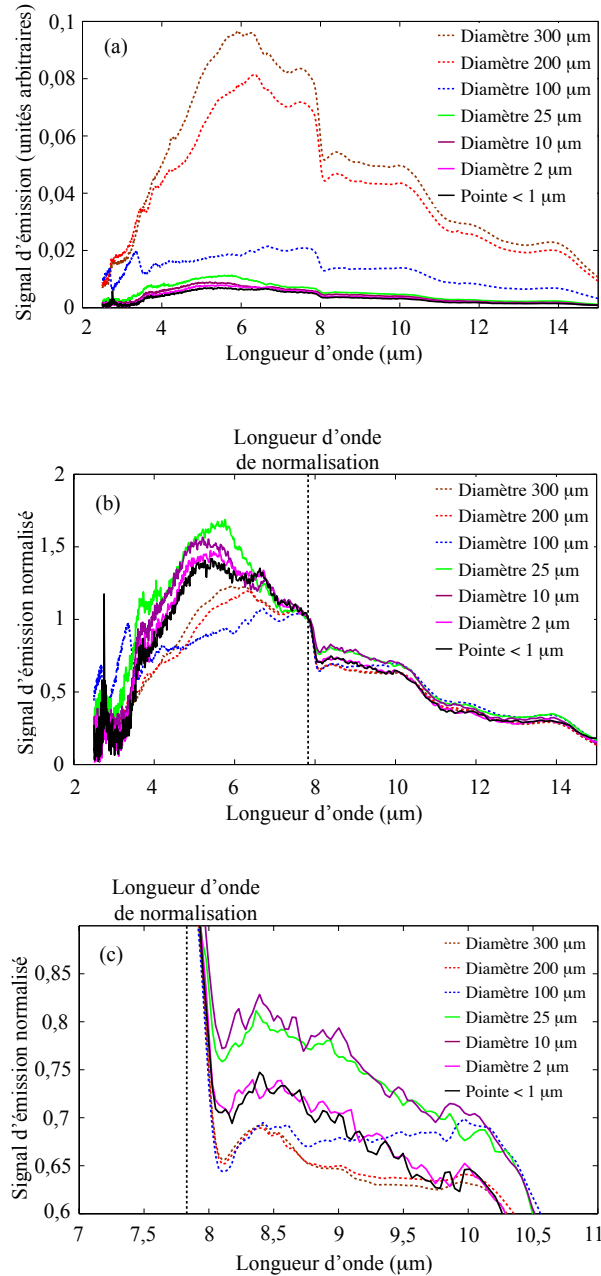


Figure 6.16 – Signaux d'émission d'un même tube en verre borosilicate (après soustraction du rayonnement ambiant pour plusieurs diamètres jusqu'à la pointe. Dans la figure (a) les signaux sont bruts, l'amplitude diminue avec le diamètre du verre, mais en plus, sa forme spectrale est modifiée pour un diamètre inférieur à 100 μm , ce qui est plus visible après normalisation des courbes. Figure (b) : les mêmes signaux d'émission sont normalisés à 7,8 μm . La modification du spectre d'émission pour des diamètres inférieurs à 100 μm est visible surtout entre 4 et 7 μm , ce qui s'explique par les modifications des propriétés radiatives du verre devenant semi-transparent pour des épaisseurs inférieures à 10 μm . Figure (c) : zoom entre 7 et 11 de la figure (b). A partir d'un diamètre de 25 μm , un pic élargi apparaît entre 8,2 et 9,7 μm , signe probable de diffraction du PPS en champ lointain.

Tout d'abord on ne connaît pas la température de la pointe du tube et il ne nous est malheureusement pas possible de la mesurer : les modifications des propriétés radiatives de la pointe empêchent toutes mesures de température à travers le rayonnement émis ; les pointes des thermocouples standards sont beaucoup plus grosses que la pointe, ce qui rend leur utilisation difficile pour une mesure *in situ*. En outre le rayonnement provenant du reste du tube chauffé a aussi un impact car une fraction est collectée par l'objectif Cassegrain comme le montre la figure 6.17. Il est difficile d'estimer cette fraction, mais même infime, le rayonnement sans PPS de la partie plus large du tube étant nettement plus important que celui de la pointe ($140 \mu\text{W}$ de puissance rayonnée pour une section de $100 \mu\text{m}$ contre 74 nW en tout pour la pointe), cet effet parasite devrait perturber sensiblement les mesures.

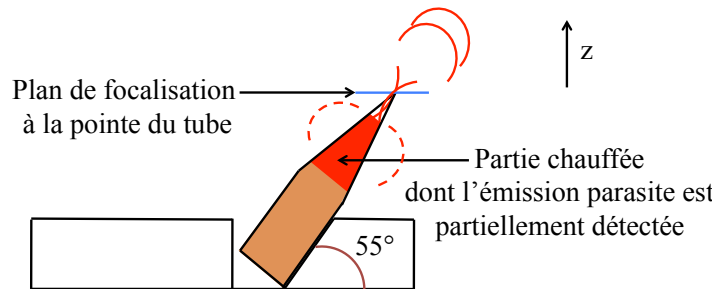


Figure 6.17 – Effet parasite du chauffage du tube sur le signal collecté à la pointe. La partie large du tube, bien qu'elle ne soit pas dans le plan focal de l'objectif, émet un rayonnement qui sera partiellement collecté par le microscope. En effet la profondeur de champ étant de l'ordre de λ/NA^2 (c'est-à-dire sensiblement égale à la longueur d'onde d'observation dans notre cas), la région où le rayonnement infrarouge est collecté dans la direction $\mathbf{z}$, dépasse très largement la zone observée dans le visible à travers l'oculaire.

Ces mesures du signal IR de la pointe du tube ouvrent la voie de la détection de la diffraction du PPS, mais comme les propriétés radiatives du milieu dans lequel il se propage sont profondément modifiées et mal connues, il nous a paru indispensable de modéliser théoriquement le spectre radiatif d'une micro-pointe de verre, en tenant compte du champ lointain et du champ proche diffracté. Ce modèle permet de mieux comprendre les mesures présentées dans cette partie et de s'assurer que la gamme de longueurs d'onde choisie est celle où il est le plus probable que l'on détecte l'émission de PPS. En effet les mesures de la constante diélectrique ont fourni la bande spectrale où *a priori* la résonance PPS est présente, mais nous n'avons pas d'informations sur l'ensemble

du spectre d'émission. Or si nous n'avons pas de certitudes théoriques sur le spectre d'émission de la pointe du tube, il n'est pas possible de savoir si nous mesurons effectivement la diffraction du PPS. Le modèle numérique utilisé dans la suite s'appuie sur l'approximation dipolaire discrète, mise en place grâce au logiciel DDSCAT 7.1.

6.3 Estimation numérique de la section efficace d'absorption du microtube

Les propriétés radiatives de petites particules sont étudiées depuis plus de cent ans sous la forme de diffusion de Lorenz-Mie qui fournit une solution rigoureuse de la diffusion d'une onde électromagnétique incidente par une sphère dans un milieu homogène. Ce problème est discuté en détail par Bohren et Huffman [12]. Dans cette étude le paramètre qui nous intéresse est la section efficace d'absorption $\sigma_{abs}(\omega)$. Celle-ci est définie comme le rapport entre la puissance absorbée (en W) et le flux du rayonnement incident sur la particule (en W/m²). Or après absorption, la puissance surfacique émise par la particule prend la forme :

$$P_{surf} = \int_0^\infty \frac{\hbar\omega^3}{\pi^2 c^2} \frac{\sigma_{abs}(\omega)}{e^{\hbar\omega/k_B T} - 1} d\omega \quad (6.10)$$

avec $\hbar$ la constante de Planck réduite et k_B la constante de Boltzmann. Le calcul de la section efficace d'absorption permet donc aussi de connaître les propriétés d'émission d'une particule. Nous nous sommes donc concentrés sur le calcul de ce paramètre pour la pointe du tube.

À notre connaissance, il n'y a pas de solution exacte de la diffusion de Lorenz-Mie pour une géométrie cylindrique, c'est pourquoi nous avons opté pour une approche numérique sous la forme de l'approximation dipolaire discrète. Le tube est discrétisé sous forme de maillage dont les points sont des dipôles. La polarisabilité des dipôles est calculée à partir de la constante diélectrique du verre (données recueillies par Palik [91]). Le logiciel utilisé pour mener les calculs est DDSCAT 7.1 (Discrete Dipole Approximation for Scattering and Absorption of Light) qui s'appuie sur des codes Fortran permettant entre autres de calculer les efficacités de diffusion et d'absorption par des particules de forme quelconque, définies comme le rapport de la section efficace de diffusion ou d'absorption sur une surface caractéristique de la particule (les références [33, 34 et 35] apportent plus de détails sur ce logiciel).

Le tube modélisé a un diamètre extérieur de 1 μm et un diamètre intérieur de 0,75 μm afin d'être du même ordre de grandeur que la section étudiée expérimentalement. La longueur du tube a été choisie pour deux valeurs extrêmes : 10 nanomètres et 3 millimètres. Le premier choix correspondant à la valeur d'une distance dipôle-dipôle, nous obtenons les propriétés radiatives d'une couronne de verre décrivant l'extrême bout du microtube. En revanche le deuxième choix

permet de rendre compte de l'effet de la taille du tube sur son émission car cette longueur est comparable à la longueur de la partie conique (entre 5 et 7 millimètres).

Cette dernière géométrie est pourtant discutable car elle est très éloignée de la géométrie du tube expérimentale, une forme conique lui serait préférable, mais le temps de calcul explose si on l'agrandit. L'excitation de la structure est possible grâce à une onde électromagnétique monochromatique incidente dont la fréquence varie entre 8 et 10 μm (voir la figure 6.18). Pour chaque fréquence de l'onde incidente (discrétisation avec un pas de 0,1 μm) l'efficacité d'absorption spectrale est calculée avant d'en faire la somme. L'élargissement de la gamme spectrale de l'onde incidente provoque aussi une augmentation du temps de calcul, sachant que les tests qui ont été réalisés en dehors de cette gamme spectrale ont montré une efficacité d'absorption très faible. C'est pourquoi ces résultats donnent une première indication des propriétés radiatives théoriques de la micro-pointe.

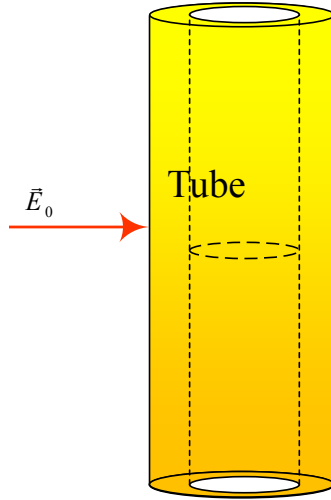


Figure 6.18 – Schéma de l'excitation du tube par une onde incidente lors de l'étude de son absorption par DDSCAT.

Les résultats du calcul numérique sont présentés dans la figure 6.19. Comme les volumes des tubes considérés sont très différents, nous avons préféré tracer la section efficace d'absorption rapportée au volume pour pouvoir les comparer. Les tubes analysés absorbent le rayonnement principalement entre 175 et 240.10¹² rad.s⁻¹, c'est-à-dire pour des longueurs d'onde comprises entre 8 et 11 μm . Ainsi le rayonnement émis par la pointe sera prépondérant dans cette

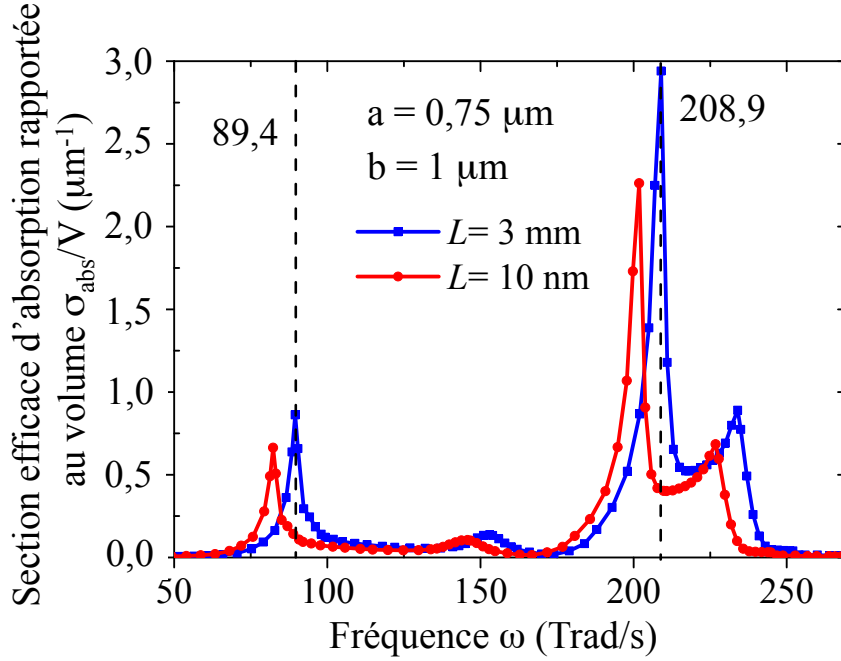


Figure 6.19 – Section efficace d’absorption rapportée au volume du tube considéré. Cette section efficace volumétrique indique que la section efficace d’absorption est beaucoup plus faible pour le tube de 10 nm de longueur que pour celui de 3 millimètres de long.

gamme de longueurs d’onde correspondant à la zone spectrale de résonance du PPS. Cette zone de fréquence est même légèrement plus large que la zone où la constante diélectrique est négative (voir pour comparaison la figure 2.19). Ceci est en accord avec les résultats sur l’élargissement spectral du PPS dans des nanostructures de verre comme la couche mince ou le tube (voir la partie 3.2). Par ailleurs la longueur du tube modifie peu le spectre de la section efficace d’absorption, le pic d’absorption maximale étant décalé de 200 à 210.10¹² rad.s⁻¹ pour une taille variant de 10 nm à 3 millimètres. La longueur du tube ne semble donc pas modifier de manière prépondérante son émission.

Cependant la dépendance angulaire des propriétés d’émission de la micro-pointe n’a pas été abordée alors que celle-ci est importante pour conforter les résultats des simulations FDTD selon lesquelles la diffraction du PPS se produit dans l’axe du tube et plus généralement dans quelle mesure l’émission de la pointe est anisotrope. Cette étude fait partie des travaux futurs car elle aidera à comprendre les expériences de mesure d’émission de la pointe en modifiant l’inclinaison du tube. Celles-ci n’ont pas fourni de résultats concluants car le probable pic dû à la diffraction du PPS est aussi observé pour une inclinaison

horizontale, ce qui ne devrait pas être le cas.

Les premiers résultats théoriques des propriétés radiatives de la pointe du micro-tube indiquent donc une forte émission de celle-ci sur une gamme spectrale réduite. Mais cette étude ne donne pas d'informations pour des longueurs d'onde supérieures à $6,3 \mu\text{m}$ (correspondant à $300.10^{12} \text{ rad.s}^{-1}$) où nous avons remarqué de fortes variations expérimentales de l'émission du tube pour des sections inférieures à $25 \mu\text{m}$. Néanmoins ces propriétés remarquables de très forts pics d'émission pour des objets microscopiques ont aussi été décrits par Joulain *et al.* pour des disques de SiO_2 de 100 à $1 \mu\text{m}$ de rayon [59]. En effet il est possible de calculer une émissivité effective pour ces objets microscopiques, qui est identique à celle d'un plan semi-infini de SiO_2 pour un disque de $100 \mu\text{m}$ de rayon, mais qui dépasse très largement la limite d'un corps noir pour un disque de rayon $1 \mu\text{m}$, particulièrement dans la bande spectrale de résonance du PPS où cette émissivité peut dépasser 10. Ces résultats montrent que la section efficace d'émission d'un objet micrométrique dépasse sa surface géométrique. En réalité le calcul de l'émissivité effective, prenant en compte cette section efficace d'émission, fournirait une émissivité inférieure à 1 [59].

Ce dernier chapitre a détaillé les résultats expérimentaux de détection du PPS se diffractant à la pointe d'un micro-tube. La bande spectrale où le PPS est recherché a été déterminée à partir des mesures de la constante diélectrique du tube. Elle correspond à la zone où la partie réelle de la permittivité diélectrique est négative et a été définie entre $8,4$ et $9,7 \mu\text{m}$ pour le verre borosilicate constituant le tube. L'expérience de chauffage et de mesure de l'émission du tube pour différentes sections a été présentée et a abouti à des résultats montrant une modification spectrale du tube lorsque son épaisseur devient inférieure à la dizaine de microns. Ces modifications incluent un pic élargi entre $8,2$ et $9,7 \mu\text{m}$ qui serait vraisemblablement la signature spectrale de la diffraction du PPS. Les propriétés radiatives de la pointe du tube ont aussi été simulées numériquement par approximation dipolaire discrète. Ces simulations révèlent une forte augmentation des propriétés émissives de la micro-pointe entre 8 et $11 \mu\text{m}$, toujours autour de la fréquence de résonance du PPS. Ces résultats ouvrent la voie à la détection indubitable de la diffraction du PPS à la pointe du tube, des problèmes de calibrage et d'effets parasites potentiels restant cependant à résoudre pour y parvenir complètement.

Conclusion

Dans cette thèse nous avons examiné la propagation du rayonnement de champ proche guidé dans des microtubes de verre. L'approche retenue pour étudier ce phénomène est surtout thermique. C'est pourquoi nous avons décidé d'introduire le contexte du rayonnement de champ proche par les problématiques générales des transferts thermiques aux nano-échelles avec les défis industriels à relever, avant de nous intéresser aux comportements optiques des matériaux à l'échelle microscopique.

Ce dernier point de vue est plus fréquemment utilisé pour introduire l'étude du PPS. Néanmoins nous avons rappelé au début de ce manuscrit que ces ondes évanescentes de surface étaient impliquées dans de nombreuses applications développées en laboratoire (contrôle des propriétés d'émission-absorption de matériaux, refroidissement sans contact, rectificateur thermique, cellule thermophotovoltaïque de champ proche, imagerie thermique ou écriture de données informatiques). Tous ces travaux s'appuient sur la longueur de propagation transverse du PPS et ne prennent pas en considération sa longueur de propagation longitudinale, contrairement à notre travail. En effet nous avons cherché à utiliser l'augmentation de cette longueur pour améliorer la conductivité thermique de nano-matériaux.

Pour ce faire nous nous sommes intéressés à une géométrie cylindrique sous forme de tube favorisant le couplage des ondes de surface en son cœur. Nous avons préféré utiliser le verre pour plusieurs raisons : d'abord parce qu'il supporte la propagation de PPS pour une fréquence proche de $10\ \mu\text{m}$, mais aussi parce qu'il est peu coûteux ; la fabrication de micro-tubes est courante à cause de la forte demande de capillaires en biologie. Enfin le verre étant un mauvais conducteur thermique, les effets d'augmentation de la conductivité thermique grâce aux PPS seront d'autant plus visibles que celle-ci est faible à l'origine.

Le chapitre 2 rappelle la définition du PPS comme produit de l'interaction entre un phonon optique transverse et un photon, et donne un aperçu de l'origine physique de cette résonance de surface. Les conditions d'existence de la résonance ont été examinées pour un milieu diélectrique sans perte (avec une constante diélectrique ϵ réelle) et avec pertes (avec ϵ complexe). Ce dernier cas est primordial pour notre étude car les pertes diélectriques du verre ne peuvent pas être négligées. De plus elles entraînent un amortissement de l'onde

de surface dans la direction longitudinale justifiant le calcul d'une longueur de propagation dans cette direction, sinon celle-ci serait infinie.

La justification théorique de l'intérêt porté aux nanotubes de verre pour améliorer la propagation de PPS est fournie au chapitre 3. En effet nous avons pu mener une résolution analytique des relations de dispersion lorsque le diamètre du tube est inférieur à 300 nm. Ce calcul a permis d'estimer la longueur de propagation longitudinale Λ du PPS dans cette géométrie. Cette étude a aussi montré que la conductivité thermique d'un nanotube de verre (proportionnelle à Λ) pouvait être doublée grâce aux PPS même si, en comparaison, une couche mince de même épaisseur aurait une conductivité thermique due aux PPS deux fois plus grande que celle du nanotube. L'étude théorique nous a, par ailleurs, permis de montrer que la forte augmentation de Λ aboutissait à une quantification du transfert de chaleur pour des nanofils de verre à température ambiante, ouvrant la voie à un codage de l'information sous forme de chaleur. Tous ces résultats s'appuient sur l'élargissement spectral du PPS se propageant à la surface d'un diélectrique polaire avec pertes si la structure considérée a au moins une de ses dimensions nanométrique.

La deuxième partie du manuscrit s'applique à démontrer expérimentalement l'existence de PPS dans des nanotubes de verre avant d'être à même de mesurer la conductivité thermique de ces structures. Étant donné que le rayonnement de champ proche ne peut pas être détecté en champ lointain, les mesures expérimentales du PPS sont en grande partie fondées sur la diffraction. Par sa géométrie, le tube offre la possibilité d'une nouvelle méthode de mesure du PPS diffracté à sa pointe micrométrique. Cette idée a été validée par des simulations numériques fournies par le logiciel Meep (FDTD) montrant qu'en plus, le PPS était diffracté le long de l'axe du tube avec une ouverture angulaire relativement faible (de l'ordre de 20° à la fréquence 10,9 μm).

Le montage expérimental pour mesurer l'émission thermique de microstructures comprend un microscope IR couplé à un spectromètre FTIR qui est le même, à quelques modifications près, que celui utilisé pour mesurer la transmission ou la réflexion IR d'échantillons microscopiques. Cependant la micro-spectroscopie en émission thermique étant inédite, elle a nécessité la mise en place d'un protocole de calibrage développé au chapitre 5. Le protocole décrit n'a pas vraiment donné les résultats escomptés mais nous avons avancé les raisons de ces blocages. En effet il est nécessaire d'utiliser des échantillons de référence ayant une émissivité la plus proche possible d'un corps gris dans le domaine spectral d'étude. Cet échantillon doit être placé sous l'objectif du microscope et doit fournir un signal d'amplitude proche de celle du signal à analyser.

En outre comme les rayonnements que l'on cherche à mesurer sont faibles (de

l'ordre de quelques dizaines de nanowatts), nous avons mis en évidence quelques effets parasites perturbant sensiblement nos mesures (soustraction du rayonnement ambiant adéquate, influence du chauffage des optiques). La prise en compte de ces effets spécifiques à la micro-spectroscopie en émission thermique est indispensable pour mener des mesures pertinentes.

Enfin les résultats expérimentaux présentés au chapitre 6 comprennent des mesures de réflexion et d'émission. La réflexion a permis d'obtenir la constante diélectrique du verre composant le micro-tube. La bande spectrale de résonance du PPS, correspondant à des valeurs de la partie réelle de la constante diélectrique négative, a ainsi pu être déterminée. Cette zone de fréquences contient le plus de densités de modes de PPS, ce qui entraîne une forte émission d'ondes de surface à ces fréquences. Les mesures d'émission de la pointe du tube indiquent une probable augmentation de l'émission pour ces fréquences. Mais les modifications des propriétés radiatives de la pointe du tube par rapport à celles de sa base compliquent l'interprétation de ces résultats. C'est pourquoi nous avons simulé la section efficace d'absorption de la pointe du tube grâce au logiciel DDSCAT qui s'appuie sur l'approximation dipolaire discrète. Ces résultats ont confirmé l'augmentation de l'émission de la pointe autour de la fréquence de résonance du PPS.

L'étude de l'émission d'une pointe de tube est très complexe pour plusieurs raisons : modifications de ses propriétés radiatives, température difficile à estimer, détection parasite de l'émission du reste du tube, étalonnage du montage difficile. Néanmoins, malgré ces limitations, les premiers résultats de détection du PPS sont encourageants.

Cette thèse ouvre de nouvelles pistes de recherche au sujet du phonon-polariton de surface. Concernant la métrologie, le calibrage du montage est tout d'abord indispensable avec un corps gris et un atténuateur placé entre le microscope et le spectromètre. Cet atténuateur doit en plus être uniforme (à l'inverse d'une grille) sous peine d'introduire des non-linéarités d'éclairement du détecteur. Les rayonnements parasites lors de la mesure d'émission du tube doivent être diminués au *maximum* en réduisant la taille du diaphragme d'observation. Cette solution est délicate à mettre en oeuvre, la pointe devant toujours se trouver dans la zone d'observation, et une taille du diaphragme trop faible (de l'ordre de $10 - 20 \mu\text{m}$ de côté) introduit des effets de diffraction supplémentaires sur le signal mesuré.

Les simulations numériques DDSCAT nécessitent aussi quelques améliorations. Elles peuvent fournir les propriétés d'émission angulaire du tube au lieu d'ex-

pressions intégrées sur tout l'espace. Ces critères sont en effet déterminants car, expérimentalement, nous n'avons accès qu'au rayonnement entre 25° et 50° par rapport à la normale. Ces informations nous permettraient de savoir la pertinence de mesures d'émission de la pointe dans plusieurs directions (horizontale, verticale et inclinée à 35°) pour montrer une émission directionnelle du PPS. En effet les premières expériences réalisées n'ont pas été convaincantes, vraisemblablement à cause d'une forte anisotropie de l'émission de la pointe qu'il est nécessaire de simuler numériquement.

Enfin notre étude théorique a mis en évidence un résultat très important : l'élargissement spectral du PPS dans des nanostructures de verre, permettant l'augmentation de la conductivité thermique de couches minces ou de nanotubes de verre et la quantification de la conductance thermique pour des nanofils de verre. Cet élargissement spectral nécessite aussi d'être prouvé expérimentalement, ce qui est possible grâce à notre montage. En effet des mesures de diffraction de PPS par des réseaux sur une couche mince de verre sont actuellement à l'étude au laboratoire EM2C. Des réseaux de périodes différentes permettront aux PPS de fréquences diverses, plus ou moins éloignées de la fréquence de résonance, d'être diffractés en champ lointain. Le microscope permettra de mesurer des émissions différentes sur une même couche mince suivant le réseau où il sera focalisé, ceci prouvera pleinement l'élargissement spectral du PPS.

Références

- [1] Milton Abramowitz and Irene A Stegun. *Handbook of Mathematical Functions : with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*. Courier Dover Publications, 2012. p. [93](#)
- [2] V M Agranovich and D L Mills. Surface Polaritons. Electromagnetic Waves at Surface and Interfaces. *North-Holland, Amsterdam*, 1982. p. [51](#), [98](#), [106](#), [109](#)
- [3] N W Ashcroft and N D Mermin. *Physique des solides*. EDP Sciences, 2002. p. [xxi](#), [42](#), [48](#), [49](#)
- [4] Madura, H ; Polakowski, H ; Wiecek B. Spectral emissivity evaluation for materials used in microelectronics. *Eurotherm Series 50*, (2) :1–6, 1997. p. [145](#)
- [5] Guillaume Baffou and Hervé Rigneault. Femtosecond-pulsed optical heating of gold nanoparticles. *Physical Review B*, 84(3) :035415, July 2011. p. [13](#)
- [6] Soumyadipta Basu and Mathieu Francoeur. Near-field radiative transfer based thermal rectification using doped silicon. *Applied Physics Letters*, 98(11) :113106, 2011. p. [27](#)
- [7] D Beaglehole and O Hunderi. Study of the interaction of light with rough metal surfaces. I. Experiment. *Physical Review B*, 2(2) :309, 1970. p. [115](#), [116](#)
- [8] Philippe Ben-Abdallah and Svend-Age Biehs. Near-field thermal transistor. September 2013. p. [xix](#), [29](#)
- [9] Philippe Ben-Abdallah and Svend-Age Biehs. Phase-change radiative thermal diode. July 2013. p. [27](#)
- [10] Philippe Ben-abdallah, Richard S Ottens, V Quetschke, G Mueller, D H Reitze, David B Tanner, Karl Joulain, Y Ezzahri, F Singer, Arthur Babuty, Pierre-olivier Chapuis, Jean-jacques Greffet, Yannick De Wilde, Emmanuel Rousseau, Alessandro Siria, Guillaume Jourdan, Sebastian Volz, Fabio Comin, Joel Chevrier, Michal Lipson, Achim Kittel, D Hellmann, L Worbes, P J Van Zwol, Bair V Budaev, and David D Bogy. Session 1P3 1 FocusSession . SC1 : Casimir Effect and Heat Transfer Anomalous Heat Transport Regimes in Complex Plasmonic Networks. pages 243–256. p. [25](#)

- [11] R E Bentley. Thermoelectric hysteresis in nickel-based thermocouple alloys. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 22(12) :1902–1907, December 1989. p. [164](#)
- [12] Craig F Bohren and Donald R Huffman. Absorption and scattering by a sphere. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, pages 82–129, 1983. p. [190](#)
- [13] G Borstel and H J Falge. Surface phonon-polaritons at semi-infinite crystals. *physica status solidi (b)*, 83(1) :11–45, 1977. p. [95](#), [96](#)
- [14] T. J. Bright, L. P. Wang, and Z. M. Zhang. Performance of Near-Field Thermophotovoltaic Cells Enhanced With a Backside Reflector. *Journal of Heat Transfer*, 136(6) :062701, March 2014. p. [32](#)
- [15] E Burstein, W P Chen, Y J Chen, and A Hartstein. Surface polaritons—propagating electromagnetic modes at interfaces. *Journal of Vacuum Science & Technology*, 11(6) :1004–1019, 1974. p. [50](#), [51](#), [63](#)
- [16] M Buttiker. Physical review. 57 :6–9, 1986. p. [90](#)
- [17] David G. Cahill, Paul V. Braun, Gang Chen, David R. Clarke, Shanhui Fan, Kenneth E. Goodson, Pawel Keblinski, William P. King, Gerald D. Mahan, Arun Majumdar, Humphrey J. Maris, Simon R. Philpot, Eric Pop, and Li Shi. Nanoscale thermal transport. II. 2003–2012. *Applied Physics Reviews*, 1(1) :011305, March 2014. p. [20](#)
- [18] W. a. Challener, Chubing Peng, a. V. Itagi, D. Karns, Wei Peng, Yingguo Peng, XiaoMin Yang, Xiaobin Zhu, N. J. Gokemeijer, Y.-T. Hsia, G. Ju, Robert E. Rottmayer, Michael a. Seigler, and E. C. Gage. Heat-assisted magnetic recording by a near-field transducer with efficient optical energy transfer. *Nature Photonics*, 3(4) :220–224, March 2009. p. [xx](#), [34](#), [36](#), [37](#)
- [19] William Albert Challener and E Charles Gage. Aim ‘. 1(12), 2008. p. [36](#)
- [20] William Albert Challener, P A Us, and Ibrahim Kursat Sendur. United States Patent. 2(12), 2008. p. [36](#)
- [21] Yann Chalopin, Jean-Numa Gillet, and Sebastian Volz. Predominance of thermal contact resistance in a silicon nanowire on a planar substrate. *Physical Review B*, 77(23) :233309, June 2008. p. [90](#)
- [22] Yann Chalopin, Marc Hayoun, Sebastian Volz, and Hichem Dammak. Surface enhanced infrared absorption in dielectric thin films with ultra-strong confinement effects. *Applied Physics Letters*, 104(1) :011905, January 2014. p. [80](#)
- [23] Pierre-Olivier Chapuis, Marine Laroche, Sebastian Volz, and Jean-Jacques Greffet. Radiative heat transfer between metallic nanoparticles. (2) :2–5, March 2008. p. [70](#)
- [24] Dye-Zone Chen, Arvind Narayanaswamy, and Gang Chen. Surface phonon-polariton mediated thermal conductivity enhancement of

- amorphous thin films. *Physical Review B*, 72(15) :155435, October 2005. p. [66](#), [68](#), [69](#), [86](#)
- [25] Gang Chen. *Nanoscale energy transport and conversion : a parallel treatment of electrons, molecules, phonons, and photons*. Oxford University Press, USA, 2005. p. [67](#), [86](#)
- [26] O. Chiatti, J. Nicholls, Y. Proskuryakov, N. Lumpkin, I. Farrer, and D. Ritchie. Quantum Thermal Conductance of Electrons in a One-Dimensional Wire. *Physical Review Letters*, 97(5) :056601, August 2006. p. [90](#)
- [27] Sutter Instrument Company. P - 1000 Flaming/Brown Micropipette Puller System Operation Manual. 2011. p. [xxvii](#), [130](#)
- [28] Nir Dahan, Avi Niv, Gabriel Biener, Vladimir Kleiner, and Erez Hasman. Space-variant polarization manipulation of a thermal emission by a SiO_2 subwavelength gratings supporting surface phonon – polaritons. *Applied Physics Letters*, 86(19) : 191102, 2005. p. [114](#)
- [29] F De Martini and Y R Shen. Nonlinear Excitation of Surface Polaritons. *Phys. Rev. Lett.*, 36(4) :216–219, January 1976. p. [105](#)
- [30] Domingos de Sousa Meneses, Jean-Francois Brun, Patrick Echegut, and Patrick Simon. Contribution of semi-quantum dielectric function models to the analysis of infrared spectra. *Applied spectroscopy*, 58(8) :969–74, August 2004. p. [172](#)
- [31] Yannick De Wilde, Florian Formanek, Rémi Carminati, Boris Gralak, Paul-Arthur Lemoine, Karl Joulain, Jean-Philippe Mulet, Yong Chen, and Jean-Jacques Greffet. Thermal radiation scanning tunnelling microscopy. *Nature*, 444(7120) :740–3, December 2006. p. [xix](#), [33](#), [34](#), [110](#), [111](#)
- [32] R. S. DiMatteo, P. Greiff, S. L. Finberg, K. a. Young-Waithe, H. K. H. Choy, M. M. Masaki, and C. G. Fonstad. Enhanced photogeneration of carriers in a semiconductor via coupling across a nonisothermal nanoscale vacuum gap. *Applied Physics Letters*, 79(12) :1894, 2001. p. [30](#)
- [33] Bruce T. Draine and Piotr J. Flatau. Discrete-dipole approximation for scattering calculations. *Journal of the Optical Society of America A*, 11(4) :1491, April 1994. p. [190](#)
- [34] Bruce T. Draine and Piotr J. Flatau. Discrete-dipole approximation for periodic targets : theory and tests. *Journal of the Optical Society of America A*, 25(11) :2693, October 2008. p. [190](#)
- [35] Bruce T Draine and Piotr J Flatau. User guide for the discrete dipole approximation code DDSCAT 7.3. *arXiv preprint arXiv :1305.6497*, 2013. p. [190](#)
- [36] D J Evans, S Ushioda, and J D McMullen. Raman Scattering from Surface Polaritons in a GaAs Film. *Phys. Rev. Lett.*, 31(6) :369–372, 1973. p. [105](#)

- [37] Shanhui Fan. Photovoltaics : an alternative 'Sun' for solar cells. *Nature nanotechnology*, 9(2) :92–3, February 2014. p. [xvii](#), [10](#)
- [38] P E Ferguson, F R Wallis, and G Chauvet. Surface plasma waves in the noble metals. *Surface Science*, 82(1) :255–269, 1979. p. [74](#)
- [39] Mathieu Francoeur, U S Ky, Rodolphe Vaillon, and M Pinar Mengüç. (19) United States (12). 1(19), 2010. p. [32](#)
- [40] Rodolphe Francoeur, Mathieu ; Vaillon and Pinar Mengüç. Thermal Impacts on the Performance of. 26(2) :686–698, 2011. p. [32](#)
- [41] K Fuchs. The conductivity of thin metallic films according to the electron theory of metals. In *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, volume 34, pages 100–108. Cambridge Univ Press, 1938. p. [86](#)
- [42] J Le Gall and M Olivier. Experimental and theoretical study of reflection and coherent thermal emission by a SiC grating supporting a surface-phonon polariton '. 55(15) :105–114, 1997. p. [114](#)
- [43] B. Glavin. Low-Temperature Heat Transfer in Nanowires. *Physical Review Letters*, 86(19) :4318–4321, May 2001. p. [90](#)
- [44] Peter R Griffiths and James A De Haseth. Fourier transform infrared spectrometry. 1986. p. [132](#), [141](#), [143](#), [147](#)
- [45] P Halevi and A D Boardman. Electromagnetic surface modes, 1982. p. [109](#)
- [46] Hendrik F Hamann, Martin O'Boyle, Yves C Martin, Michael Rooks, and H Kumar Wickramasinghe. Ultra-high-density phase-change storage and memory. *Nature materials*, 5(5) :383–7, May 2006. p. [37](#), [38](#)
- [47] Rudolf Hergt, Silvio Dutz, Robert Müller, and Matthias Zeisberger. Magnetic particle hyperthermia : nanoparticle magnetism and materials development for cancer therapy. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 18(38) :S2919–S2934, September 2006. p. [12](#), [13](#)
- [48] Xiaohua Huang, Prashant K Jain, Ivan H El-Sayed, and Mostafa a El-Sayed. Plasmonic photothermal therapy (PPTT) using gold nanoparticles. *Lasers in medical science*, 23(3) :217–28, July 2008. p. [13](#)
- [49] Deutsch B. Novotny L. Huber, A. J. and R. Hillenbrand. Focusing of surface phonon polaritons. *Applied Physics Letters*, 92(20) :203104, 2008. p. [110](#)
- [50] Ocelic N. Kazantsev D. Huber, A. J. and R. Hillenbrand. Near-field imaging of mid-infrared surface phonon polariton propagation. *Applied Physics Letters*, 87(8) :081103, 2005. p. [110](#), [111](#)
- [51] F Huth, M Schnell, J Wittborn, N Ocelic, and R Hillenbrand. Infrared-spectroscopic nanoimaging with a thermal source. *Nature materials*, 10(5) :352–6, May 2011. p. [xix](#), [32](#), [33](#), [35](#)
- [52] M C Hutley and D Maystre. The total absorption of light by a diffraction grating. *Optics communications*, 19(3) :431–436, 1976. p. [112](#)

- [53] H Ibach. Optical Surface Phonons in Zinc Oxide Detected by Slow-Electron Spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 24(25) :1416–1418, 1970. p. [105](#)
- [54] H Ibach. Surface Vibrations of Silicon Detected by Low-Energy Electron Spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 27(5) :253–256, 1971. p. [105](#)
- [55] J D Jackson. Classical Electrodynamics, ser. Classical Electrodynamics, by John David Jackson, 1999. p. [89](#)
- [56] J R Jasperse, A Kahan, J N Plendl, and S S Mitra. Temperature dependence of infrared dispersion in ionic crystals lif and mgo. *Physical Review*, 146(2) :526, 1966. p. [172](#)
- [57] Andrew C Jones and Markus B Raschke. Thermal infrared near-field spectroscopy. *Nano letters*, 12(3) :1475–81, March 2012. p. [34](#)
- [58] K. Joulain, R. Carminati, J. P Mulet, and J. J. Greffet. Definition and measurement of the local density of electromagnetic states close to an interface. page 12, July 2003. p. [111](#)
- [59] K ; Ezzahri Y Joulain and Drevillon J. *Nanoscale and Microscale Heat Transfer IV - Booklet of Abstracts*. 2014. p. [193](#)
- [60] M Kanskar and M N Wybourne. Measurement of the acoustic-phonon mean free path in a free-standing metal film. *Phys. Rev. B*, 50(1) :168–172, 1994. p. [90](#)
- [61] Fritz Keilmann and Rainer Hillenbrand. Near-field microscopy by elastic light scattering from a tip. *Philosophical transactions. Series A, Mathematical, physical, and engineering sciences*, 362(1817) :787–805, April 2004. p. [111](#)
- [62] D. Kember, D.H. Chenery, N. Sheppard, and J. Fell. Fourier-transform i.r. emission studies of weakly emitting overlayers on metal surfaces; experimental and spectral-ratioing procedures and the comparative use of room temperature triglycine sulphate and low-temperature mercury cadmium telluride detectors. *Spectrochimica Acta Part A : Molecular Spectroscopy*, 35(5) :455–459, January 1979. p. [xxviii](#), [145](#), [146](#)
- [63] A. Kittel, U. F. Wischnath, J. Welker, O. Huth, F. Ruting, and S.-a. Biehs. Near-field thermal imaging of nanostructured surfaces. *Applied Physics Letters*, 93(19) :193109, 2008. p. [33](#)
- [64] K L Kliwer and R Fuchs. Theory of dynamical properties of dielectric surfaces. *Adv. Chem. Phys*, 27 :355–541, 1974. p. [109](#)
- [65] Maximilian Kreiter, Jens Oster, Roy Sambles, Stephan Herminghaus, Silvia Mittler-Neher, and Wolfgang Knoll. Thermally induced emission of light from a metallic diffraction grating, mediated by surface plasmons. *Optics Communications*, 168(1) :117–122, 1999. p. [112](#)
- [66] R Landauer. Spatial Variation of Currents and Fields Due to Localized Scatterers in Metallic Conduction. *IBM Journal of Research and Development*, 1(3) :223–231, 1957. p. [90](#), [91](#)

- [67] Rolf Landauer. Can a length of perfect conductor have a resistance? *Physics Letters A*, 85(2) :91–93, 1981. p. [90](#), [91](#)
- [68] W A Lanford, K Davis, P Lamarche, T Laursen, R Groleau, and R H Dorremus. Hydration of soda-lime glass. *Journal of non-crystalline solids*, 33(2) :249–266, 1979. p. [176](#)
- [69] M. Laroche, R. Carminati, and J.-J. Greffet. Near-field thermophotovoltaic energy conversion. *Journal of Applied Physics*, 100(6) :063704, 2006. p. [11](#)
- [70] Andrej Lenert, David M Bierman, Youngsuk Nam, Walker R Chan, Ivan Celanović, Marin Soljačić, and Evelyn N Wang. A nanophotonic solar thermophotovoltaic device. *Nature nanotechnology*, 9(2) :126–30, February 2014. p. [30](#)
- [71] R. Mahajan and G. Chrysler. Cooling a Microprocessor Chip. *Proceedings of the IEEE*, 94(8) :1476–1486, August 2006. p. [xvii](#), [6](#), [7](#)
- [72] A A Maradudin and D L Mills. Scattering and absorption of electromagnetic radiation by a semi-infinite medium in the presence of surface roughness. *Physical Review B*, 11(4) :1392, 1975. p. [115](#)
- [73] A A Maradudin, E W Montroll, G H Weiss, and I P Ipatova. *Theory of Lattice Dynamics in the Harmonic Approximation*, volume Supplement of *Solid State Physics*. Academic Press, New York, second edition, 1971. p. [48](#)
- [74] F Marquier. Interaction des ondes de surface avec des microstructures périodiques. Émission thermique cohérente et transmission résonante. 33(1), 2004. p. [114](#), [145](#)
- [75] F Marquier, K Joulain, JP Mulet, and R Carminati. Coherent spontaneous emission of light by thermal sources. *Physical Review B*, pages 1–11, 2004. p. [114](#), [115](#), [141](#), [158](#)
- [76] Riccardo Messina and Philippe Ben-Abdallah. Graphene-based photovoltaic cells for near-field thermal energy conversion. *Scientific reports*, 3 :1383, January 2013. p. [31](#)
- [77] A. J. Minnich, M. S. Dresselhaus, Z. F. Ren, and G. Chen. Bulk nanostructured thermoelectric materials : current research and future prospects. *Energy & Environmental Science*, 2(5) :466, 2009. p. [xvii](#), [7](#), [9](#)
- [78] By Gordon E Moore. Cramming more components onto integrated circuits. 38(8), 1975. p. [6](#)
- [79] Stéphane Mornet, Sbastien Vasseur, Fabien Grasset, and Etienne Duguet. Magnetic nanoparticle design for medical diagnosis and therapy. *Journal of Materials Chemistry*, 14(14) :2161, 2004. p. [11](#), [12](#), [14](#)
- [80] Jean-Philippe Mulet. *Modélisation du rayonnement thermique par une approche électromagnétique. Rôle des ondes de surface dans le transfert d'énergie aux courtes échelles et dans les forces de*

- Casimir*. PhD thesis, Université Paris Sud-Paris XI, 2003. p. 51, 55
- [81] Arvind Narayanaswamy and Gang Chen. Surface modes for near field thermophotovoltaics. *Applied Physics Letters*, 82(20) :3544, 2003. p. 29
 - [82] E. Nefzaoui, J. Drevillon, and K. Joulain. Selective emitters design and optimization for thermophotovoltaic applications. *Journal of Applied Physics*, 111(8) :084316, 2012. p. 30, 31
 - [83] Elyes Nefzaoui, Jérémie Drevillon, Younès Ezzahri, and Karl Joulain. A simple radiative thermal diode. page 14, June 2013. p. 27
 - [84] (Sutter Instrument) Oesterle, Adair. P-1000 & P-97 Pipette Cookbook. 2011. p. xxvii, 129, 130, 131
 - [85] J. Ordonez-Miranda, Laurent Tranchant, Takuro Tokunaga, Beomjoon Kim, Bruno Palpant, Yann Chalopin, Thomas Antoni, and Sebastian Volz. Anomalous thermal conductivity by surface phonon-polaritons of polar nano thin films due to their asymmetric surrounding media. *Journal of Applied Physics*, 113(8) :084311, 2013. p. 65, 67, 93, 95
 - [86] J. Ordonez-Miranda, Ronggui Yang, and J. J. Alvarado-Gil. A constitutive equation for nano-to-macro-scale heat conduction based on the Boltzmann transport equation. *Journal of Applied Physics*, 109(8) :084319, 2011. p. 18
 - [87] José Ordonez-Miranda, Laurent Tranchant, Beomjoon Kim, Yann Chalopin, Thomas Antoni, and Sebastian Volz. Quantized Thermal Conductance of Nanowires at Room Temperature Due to Zenneck Surface-Phonon Polaritons. *Physical Review Letters*, 112(5) :055901, February 2014. p. 65, 89
 - [88] Clayton R. Otey, Wah Tung Lau, and Shanhui Fan. Thermal Rectification through Vacuum. *Physical Review Letters*, 104(15) :154301, April 2010. p. 26, 27
 - [89] Richard Ottens, Volker Quetschke, Stacy Wise, Alexander Alemi, Ramsey Lundock, Guido Mueller, David H. Reitze, David B. Tanner, and Bernard F. Whiting. Near-field radiative heat transfer between macroscopic planar surfaces. pages 2–5, March 2011. p. xviii, 26
 - [90] Andreas Otto. Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection. *Zeitschrift für Physik*, 216(4) :398–410, 1968. p. 108
 - [91] Edward D Palik. CRC Handbook of Optical Constants of Solids, 1985. p. xxii, xxx, 61, 119, 175, 177, 178, 190
 - [92] Roger Petit. Electromagnetic theory of gratings. *Electromagnetic Theory of Gratings. Series : Topics in Current Physics, ISBN : 978-3-642-81502-7. Springer Berlin Heidelberg (Berlin, Heidelberg), Edited by Roger Petit, vol. 22, 22, 1980.* p. 112

- [93] C A Pfeiffer, E N Economou, and K L Ngai. Surface polaritons in a circularly cylindrical interface : surface plasmons. *Physical review B*, 10(8) :3038, 1974. p. [70](#)
- [94] Dakrong Pissuwan, Stella M Valenzuela, and Michael B Cortie. Therapeutic possibilities of plasmonically heated gold nanoparticles. *Trends in biotechnology*, 24(2) :62–7, February 2006. p. [12](#), [13](#)
- [95] Max Planck. The theory of heat radiation. *molecules*, 6 :1023, 1914. p. [16](#)
- [96] Heinz Raether. *Surface plasmons on smooth surfaces*. Springer, 1988. p. [51](#), [52](#)
- [97] N. Rahbany, M. Kazan, M. Tabbal, R. Tauk, J. Jabbour, J. Brault, B. Damilano, and J. Massies. Measurement of the effect of plasmon gas oscillation on the dielectric properties of p- and n-doped Al_xGa_{1-x}N films using infrared spectroscopy. *Journal of Applied Physics*, 114(5) :053505, 2013. p. [172](#)
- [98] Luis Rego and George Kirczenow. Quantized Thermal Conductance of Dielectric Quantum Wires. *Physical Review Letters*, 81(1) :232–235, July 1998. p. [90](#), [93](#), [94](#)
- [99] Luis Rego and George Kirczenow. Fractional exclusion statistics and the universal quantum of thermal conductance : A unifying approach. *Physical Review B*, 59(20) :13080–13086, May 1999. p. [90](#), [93](#)
- [100] Eden Rephaeli, Aaswath Raman, and Shanhui Fan. Ultrabroadband photonic structures to achieve high-performance daytime radiative cooling. *Nano letters*, 13(4) :1457–61, April 2013. p. [xviii](#), [21](#), [23](#)
- [101] D M Roessler. Kramers-Kronig analysis of non-normal incidence reflection. *British Journal of Applied Physics*, 16(9) :1359, 1965. p. [172](#)
- [102] A Rogalski. HgCdTe infrared detector material : history, status and outlook. *Reports on Progress in Physics*, 68(10) :2267–2336, October 2005. p. [xxvii](#), [132](#), [133](#)
- [103] Patrick K. Schelling, Simon R. Phillpot, and Pawel Keblinski. Comparison of atomic-level simulation methods for computing thermal conductivity. *Physical Review B*, 65(14) :144306, April 2002. p. [19](#)
- [104] K Schwab, EA Henriksen, JM Worlock, and ML Roukes. Measurement of the quantum of thermal conductance. *Nature*, 1275(1997) :1997–2000, 2000. p. [90](#), [93](#), [96](#)
- [105] I K Sendur, A Kosar, and M P Mengüç. Nanoplasmonic device with nanoscale cooling, 2013. p. [36](#)
- [106] Andrei Shchegrov, Karl Joulain, Rémi Carminati, and Jean-Jacques Grefet. Near-Field Spectral Effects due to Electromagnetic Surface Excitations. *Physical Review Letters*, 85(7) :1548–1551, August 2000. p. [172](#)
- [107] William Shockley and Hans J. Queisser. Detailed Balance Limit of Efficiency of p-n Junction Solar Cells. *Journal of Applied Physics*, 32(3) :510, 1961. p. [10](#)

- [108] W G Spitzer, D A Kleinman, and C J Frosch. Infrared properties of cubic silicon carbide films. *Physical Review*, 113(1) :133, 1959. p. [xxi](#), [58](#)
- [109] N. Stojanovic, D. H. S. Maithripala, J. M. Berg, and M. Holtz. Thermal conductivity in metallic nanostructures at high temperature : Electrons, phonons, and the Wiedemann-Franz law. *Physical Review B*, 82(7) :075418, August 2010. p. [90](#)
- [110] J Taine, Jean-Pierre Petit, and Estelle Iacona. *Transferts Thermiques*. Dunod, 2008. p. [15](#), [159](#)
- [111] T. S. Tighe, J. M. Worlock, and M. L. Roukes. Direct thermal conductance measurements on suspended monocrystalline nanostructures. *Applied Physics Letters*, 70(20) :2687, 1997. p. [92](#)
- [112] Takuro Tokunaga, Laurent Tranchant, Nobuyuki Takama, Sebastian Volz, and Beomjoon Kim. Experimental Study of Heat Transfer in Micro Glass Tubes Mediated by Surface Phonon Polaritons. *Journal of Physics : Conference Series*, 395 :012108, November 2012. p. [181](#)
- [113] S Vassant, a Archambault, F Marquier, F Pardo, U Gennser, a Cavanna, J L Pelouard, and J J Greffet. Epsilon-near-zero mode for active optoelectronic devices. *Physical review letters*, 109(23) :237401, December 2012. p. [xviii](#), [24](#)
- [114] R. Venkatesh, Jay Amrit, Yann Chalopin, and Sebastian Volz. Thermal resistance of metal nanowire junctions in the ballistic regime. *Physical Review B*, 83(11) :115425, March 2011. p. [90](#)
- [115] Sebastian Volz. *Microscale and nanoscale heat transfer*. Springer, 2007. p. [xviii](#), [18](#), [21](#), [22](#), [172](#)
- [116] Sebastian VOLZ and Jean-Jacques GREFFET. Transferts de chaleur à l'échelle du nanomètre. *Techniques de l'ingénieur Nanotechnologies pour l'énergie, la santé et l'agroalimentaire*, base docum(ref. article : nm5110), 2014. p. [16](#)
- [117] Yan Wang, Ajit K. Vallabhaneni, Bo Qiu, and Xiulin Ruan. Two-Dimensional Thermal Transport in Graphene : A Review of Numerical Modeling Studies. *Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering*, 18(2) :155–182, April 2014. p. [19](#)
- [118] L Wendler and R Haupt. Long-range surface plasmon-polaritons in asymmetric layer structures. *Journal of applied physics*, 59(9) :3289–3291, 1986. p. [74](#)
- [119] H.-S. Philip Wong, Simone Raoux, SangBum Kim, Jiale Liang, John P. Reifenberg, Bipin Rajendran, Mehdi Asheghi, and Kenneth E. Goodson. Phase Change Memory. *Proceedings of the IEEE*, 98(12) :2201–2227, December 2010. p. [38](#)
- [120] Takahiro Yamamoto, Satoshi Watanabe, and Kazuyuki Watanabe. Universal Features of Quantized Thermal Conductance of Carbon Nanotubes. *Physical Review Letters*, 92(7) :075502, February 2004. p. [90](#)

- [121] Fuzi Yang, J R Sambles, and G W Bradberry. Long-range surface modes supported by thin films. *Physical Review B*, 44(11) :5855, 1991. p. [61](#), [68](#), [70](#), [73](#), [77](#), [78](#), [98](#)
- [122] Cavour Yeh and Fred I Shimabukuro. *The essence of dielectric waveguides*. Springer, 2008. p. [68](#), [70](#), [76](#), [77](#), [78](#)
- [123] G N Zhizhin, E A Vinogradov, M A Moskalova, and V A Yakovlev. Applications of surface polaritons for vibrational spectroscopic studies of thin and very thin films. *Applied Spectroscopy Reviews*, 18(2) :171–263, 1982. p. [112](#)