

Adressage et contrôle de nanosources optiques par plasmonique intégrée ou fibrée

Julien Barthes

▶ To cite this version:

Julien Barthes. Adressage et contrôle de nanosources optiques par plasmonique intégrée ou fibrée. Physique [physics]. Université de Bourgogne, 2015. Français. NNT: 2015DIJOS011. tel-01214600

HAL Id: tel-01214600 https://theses.hal.science/tel-01214600

Submitted on 12 Oct 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.



UNIVERSITÉ DE BOURGOGNE

Faculté des Sciences

Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne Département Nanosciences

Adressage et contrôle de nanosources optiques par plasmonique intégrée ou fibrée

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

par

Julien BARTHES

soutenue le 18 juin 2015

devant la commission d'examen composée de

Girard	С.	Directeur de recherche CNRS, CEMES, Toulouse	Rapporteur
Drezet	A.	Chargé de recherche CNRS, Institut Néel, Grenoble	Rapporteur
Martin	О.	Professeur, EPFL, Lausanne	Examinateur
Greffet	JJ.	Professeur, Institut d'Optique, Palaiseau	Examinateur
Guérin	S.	Professeur, Univ. de Bourgogne, ICB, Dijon	Examinateur
Dereux	А.	Professeur, Univ. de Bourgogne, ICB, Dijon	directeur de thèse
Colas des Francs	G.	Professeur, Univ. de Bourgogne, ICB, Dijon	co-encadrant de thèse

Adressage et contrôle de nanosources optiques par plasmonique intégrée ou fibrée

Résumé :

Les plasmons polaritons de surface, modes supportés par des nanostructures métalliques permettent de confiner la lumière à des échelles sub-longueurs d'onde. En s'affranchissant de la limite de diffraction, ces modes constituent des pistes intéressantes pour l'adressage et le contrôle de nanosources optiques (molécules, boites quantiques...). Par exemple, un nanofil métallique constitue un guide plasmonique unidimensionnel qui permet d'exciter une nanosource ou encore de coupler deux émetteurs avec des applications possibles pour la réalisation de composants nano-optiques intégrés. En revanche, la perte d'énergie dans le métal diminue la portée de ces dispositifs. Une stratégie consiste donc à travailler sur une configuration hybride : plasmonique et fibre optique, pour coupler efficacement l'émission de la nanosource à un mode de fibre. Ceci ouvre la voie à la réalisation d'une nanosource fibrée de manipulation aisée pouvant être utilisée comme source de photon unique pour la cryptographie quantique ou plus simplement comme une sonde de champ proche optique haute résolution.

Après une étude des principaux canaux de relaxation d'une molécule fluorescente à proximité d'un guide plasmonique, nous discutons de l'optimisation du couplage entre l'émetteur et le guide plasmonique en jouant sur sa forme et la longueur d'onde d'émission. Ensuite, nous nous intéressons au comportement d'une structure hybride composée d'une fibre optique étirée et métallisée. Enfin, nous montrons que l'optimisation du transfert d'énergie d'une molécule fluorescente en présence de cette structure permet de collecter plus de 50% de l'énergie lumineuse d'un nano-émetteur posé sur un substrat vers une fibre optique par le truchement d'un plasmon.

Addressing and control of optical nanosources by integrated or fibered plasmonics

Abstract :

Surface plasmon polariton (SPP) can confine light on subwavelength dimensions. Since they are not diffraction limited, they are of great interest for addressing and controlling optical nanosources. For example, a metal nanowire defines 1D plasmonic waveguide with a great potential for either addressing or coupling quantum emitters. Therefore, SPP opens great opportunities for integrated optical applications.

However, SPP suffer from ohmic losses that jeopardize the applications of plasmonic components. In this context, we study the possibilities provided by an hybrid plasmonicphotonic structure to couple efficiently an emitter to a fiber mode. Such a structure paves the way for fibered single photon nanosource or high resolution optical probe.

In this thesis manuscript, we first study the coupling rate between a fluorescent molecule and a metallic nanowire thanks to Green's dyad formalism. This leads us to distinguish the different relaxation channels and the enhancement of the energy transferred into the plasmonic guided mode by optimizing the shape of the guide (crystalline nanowire, slow modes). Then, we investigate the energy propagation in a metal coated tapered optical fiber.

Finally, we achieve an optimal configuration for which more than 50% of the energy emitted by a quantum emitter laid on a substrat is transferred into an optical fiber.

Remerciements

Cette thèse, commencée en 2009, est rendue possible grâce à la bienveillance des proviseurs M. Gey, P. Alliot et P. Grand du lycée Eiffel (Dijon) où j'exerce à temps plein en tant qu'enseignant durant la période de réalisation de cette thèse.

Je remercie également, le directeur des études doctorales et le conseil scientifique de l'université de Bourgogne qui ont accepté de soutenir cette thèse pendant ces 6 années (2009-2015).

Ce travail n'aurait évidemment pas pu aboutir sans la disponibilité et l'enseignement de Gérard Colas des Francs qui m'a accompagné et supporté pendant tout ce temps. Sa pédagogie et sa patience m'ont permis de garder la motivation nécessaire à la réalisation de cette thèse.

J'adresse également mes sincères remerciements à Alain Dereux qui m'a accordé sa confiance.

Je tiens également à remercier Alexandre Bouhelier, Jean Claude Weeber, Kamal Hammani pour leurs discussions scientifiques toujours pertinentes.

Je salue chaleureusement Elly Lacroute pour son extrême disponibilité.

Je souhaite également adresser mes remerciements à Christian Girard, Aurélien Drezet, Olivier Martin, Jean-Jacques Greffet et Stéphane Guérin qui m'ont fait l'honneur d'être membres du jury de ma soutenance de thèse.

Lors de la finalisation de ce manuscrit, mes pensées se tournent vers mon épouse pour sa patience infinie devant mes nombreuses tentatives d'explications de ce travail ainsi que mes enfants grâce auxquels « nanoscopique » est devenu une insulte dans la cours de récréation. Je remercie également mes parents qui ont toujours été très curieux et intéressés de savoir ce que pouvait signifier le titre de cette thèse.

Table des matières

In	trod	uction	1
1	$ tilde{\mathbf{E}}$ ta	t de l'art Metivations	3
	$1.1 \\ 1.2$	Nano-optique et spectroscopie de molécules uniques	3 6
2	Cοι	plage d'un émetteur à un nanofil plasmonique	19
	2.1	Relation de dispersion et densité de modes guidés	20
	2.2	Densité locale de modes	23
	2.3	Canaux de relaxation	27
	2.4	Efficacité de couplage (facteur β)	33
	2.5	Nanofil cristallin	34
	2.6	Influence d'un substrat	36
	2.7	Conclusion	43
3	Effe	et des pertes et couplage en bordure de bande interdite	45
	3.1	Comportement quasi-statique	45
	3.2	Facteur de Purcell plasmonique	47
	3.3	Régime quasistatique	52
	3.4	Régime simili-quasistatique	53
	3.5	Taux coopératif	56
	3.6	Conclusion	59
4	Son	des plasmoniques pour le champ proche optique	61
	4.1	Modes d'une fibre métallisée	62
	4.2	Théorie des modes couplés en présence de pertes	68
	4.3	Superfocalisation	70
	4.4	Conclusion	74
5	Nar	nosource optique fibrée	75
	5.1	Modélisation par FEM	76
	5.2	Optimisation de la géométrie	83
	5.3	Jonction pointe-surface	88
	5.4	Conclusion	89
6	Cor	clusion générale et perspectives	91

A	Mét A.1 A.2 A.3	bode du tenseur de Green Solveur de mode pour des guides 2DCondition de résonanceExpression de \mathbf{G}_0^{int} pour une section rectangulaire	93 93 95 95
В	Infl	uence des pertes sur les taux d'émission	97
	B.1	Expression de $\Gamma_{\rm SPP}$ sans perte	97
	B.2	Calcul du taux non-radiatif	98
С	Fib	re métallisée	101
	C.1	Champ modal	101
	C.2	Calcul des coefficients de couplage avec perte	104
	C.3	Justification de la représentation avec $\Sigma_j b_j^2 $	111
D	Nar	osource optique Fibrée	113
	D.1	Vérification de la puissance émise par un dipole	113
	D.2	Optimisation de la taille de la fenêtre de calcul	114

Introduction

Ce travail a pour objectif de dégager les principaux mécanismes de couplage entre un nano-émetteur et une structure guidante métallique afin d'optimiser ce couplage et de contrôler le signal émis.

La technologie proposée exploite les plasmon-polaritons de surface (SPP pour "Surface Plasmon Polariton") qui sont des modes propres confinés à l'interface entre un métal et un diélectrique. Un plasmon-polariton résulte du couplage d'une onde électromagnétique avec l'oscillation collective d'un plasma (gaz de charges libres) qui se manifeste comme une onde de polarisation à travers le plasma. Dans notre cas, le plasma est constitué des électrons de conduction d'un métal. Lorsque les oscillations électriques restent confinées à la surface du métal, le mode est appelé plasmon-polariton de surface. De tels modes, ne mettant en jeu que des densités surfaciques de charges de polarisation, peuvent être supportés par des structures métalliques de dimensions nanométriques. La première proposition de guide plasmonique date de 1997 et un consiste en un nanofil métallique pouvant supporter des modes plasmons extrêmement confinés [1]. En s'affranchissant de la diffraction, les guides plasmoniques ont ouvert une nouvelle voie pour l'adressage et le contrôle de nanosources optiques [2, 3]. Cette nouvelle technologie permet alors l'imagerie optique à l'échelle de la molécule unique, le transfert de données à l'échelle nanoscopique voire la réalisation de composants nanophotoniques tels que des commutateurs ou des transistors optiques [4].

Afin d'exposer le travail effectué sur l'étude des interactions entre un émetteur dipolaire et une structure guidante plasmonique, ce mémoire est organisé de la manière suivante :

- le chapitre 1 décrit les progrès effectués dans le domaine de la plasmonique et du contrôle de nanosources et permet de motiver les configurations étudiées à commencer par un simple nanofil métallique pour finir avec une fibre optique étirée et métallisée.
- Le chapitre 2 détaille les principaux canaux de relaxation d'une molécule fluorescente à proximité d'un guide plasmonique.
- Le chapitre 3 est dédié à l'amélioration du couplage par choix de la longueur d'onde d'émission ou de la taille du guide. Un enjeu important est l'optimisation du transfert d'énergie entre un nano-émetteur et une fibre optique via un plasmon.
- Le chapitre 4 s'attache à décrire le comportement des modes d'une fibre optique métallisée ainsi que du couplage entre ceux-ci lorsque la fibre est étirée.
- Enfin, le chapitre 5 étudie la géométrie de la partie métallisée d'une fibre optique étirée afin d'optimiser la transmission de l'énergie d'une molécule fluorescente dans la fibre optique.

Les choix effectués au début de cette thèse se sont révélés pertinents comme le montre la littérature abondante sur ce sujet des années 2011 jusqu'à ce jour (voir chapitre I.).

Nous avons participé à ce mouvement au travers des publications suivantes :

- Purcell factor for a point-like dipolar emitter coupled to a two-dimensional plasmonic waveguide, J. Barthes, G. Colas des Francs, A. Bouhelier, J.-C. Weeber, and A. Dereux, Physical Review B, 84, 073403 (2011)
- A coupled lossy local-mode theory description of a plasmonic tip, J. Barthes, G. Colas des Francs, A. Bouhelier and A. Dereux, New Journal of Physics, 14 (2012)
- Coupling of a dipolar emitter into one-dimensional surface plasmon, J. Barthes, A. Bouhelier, A. Dereux & G. Colas des Francs, Nature Scientific Reports (2013)
- Plasmonic near-field probe for fibered single photon source and nanospectroscopy applications, J. Barthes, S. Derom, F. Valdivia-Valero, A. Bouhelier, A. Dereux and G. Colas des Francs, en préparation.

Chapitre 1

État de l'art

1.1 Motivations

1.1.1 Nanophotonique et plasmonique

Que ce soit pour une meilleure compréhension des phénomènes ou une amélioration des performances de système actuels, la nécessité de réduire la taille des systèmes est primordiale. Les nanosciences et nanotechnologies font ainsi depuis plus de vingt ans l'objet de travaux nombreux mêlant la physique, la chimie, la biologie, les sciences de l'ingénieur...

Par exemple, l'industrie micro-électronique cherche à intégrer un maximum de composants sur une puce afin de d'augmenter ces capacités de calculs. On atteint aujourd'hui des tailles de composants de l'ordre de 30 nm. Cependant, la bande passante de nanocomposants électroniques est limitée autour de quelques GHz [5].



FIGURE 1.1 – Vitesses opérationnelles et dimensions critiques des différentes technologies de composants, mettant en valeur leurs forces et leurs faiblesses. Reproduit avec la permission de [6], S. Bland, copyright 2006.

À l'opposé, la photonique permet d'atteindre des bandes passantes bien supérieures (de l'ordre du THz) ce qui la rend incontournable pour le transfert de données à très haut débit et a conduit à chercher à miniaturiser les dispositifs optiques (cf. fig. 1.1). De nombreuses avancées ont été réalisées dans le domaine de la photonique intégrée depuis les années 70 [7]. Cependant, la taille minimale des composants est limitée par la diffraction. Dans le domaine visible celle-ci est de l'ordre de $0, 5 - 1 \mu m$. Depuis la fin des années 90, de nouveaux composants reposant sur l'utilisation de plasmons ont fait leur apparition [8]. L'utilisation d'ondes de charges de surfaces sur des supports métalliques plutôt que des électrons ou des photons permet alors de combiner la miniaturisation de la micro-électronique à la bande passante de la photonique [9].

En parallèle, en confinant la lumière sur des dimensions de l'ordre de la longueur d'onde (nano-optique) ou très inférieure à celle-ci (plasmonique), il est possible de sonder et de manipuler la matière à des échelles jusqu'alors inaccessibles. Les recherches sur les nanotechnologies suscitent des espoirs importants en raison de la réponse optique de la matière, à l'échelle du nanomètre. Ces propriétés permettent d'envisager de nouvelles fonctions jusqu'ici inimaginables ou d'améliorer grandement des dispositifs existant. Nous pouvons citer de manière non-exhaustive

- une amélioration de la sensibilité de capteurs chimiques (seuil de pollution) ou biologiques (diagnostique précoce)
- la réalisation de composants nanophotoniques permettant d'augmenter considérablement le débit d'informations par rapport à leurs homologues micro électroniques;
- la manipulation et le piégeage de macromolécules d'intérêt biologique;
- le contrôle et la manipulation d'une source de photons uniques nécessaire à la cryptographie quantique, ...

1.1.2 Ordres de grandeurs, difficultés et verrous

Réponse optique de nanostructures

L'interaction de la lumière avec la matière dépend fortement des dimensions caractéristiques mises en jeu. Nous voyons apparaître de nouveaux phénomènes lorsque la dimension du matériau (d), la longueur d'onde de la lumière (λ) et/ou la longueur caractéristique δ de la réponse électronique sont comparables (cf.fig 1.2). Il est alors utile de classifier les matériaux selon leur comportement diélectrique (isolant), métallique ou semi-conducteur.

Pour les matériaux **diélectriques**, la structure électronique influe peu sur leur réponse optique. La dimension caractéristique dépend donc uniquement de la longueur d'onde dans le milieu d'indice n. La réponse optique est limitée par la diffraction, soit une



FIGURE 1.2 – Les différentes échelles spatiales mises en jeu lors de l'interaction lumière-matière.

taille minimale de l'ordre de $d \sim \lambda/2n \sim 500$ nm pour le domaine visible et proche infrarouge. L'étude des matériaux diélectriques de dimensions proches de cette limite est l'objet de la nano-optique. Citons notamment la microscopie en champ proche optique [10] et les travaux portant sur les micro-cavités optiques permettant de contrôler l'émission de fluorescence [11]. Nous reviendrons sur ces derniers dans le paragraphe 1.2.1. Dans le cas des **métaux**, l'épaisseur de peau caractérise la longueur de pénétration d'une onde électromagnétique. Elle est de l'ordre de 10 nm dans le domaine visible. Des nanostructures à ces dimensions ($d \sim 10$ nm) présentent donc une réponse optique originale. Nous verrons que de telles objets supportent des modes particuliers appelés Plasmons-Polaritons de Surface (SPP) qui résultent d'un couplage entre une onde électromagnétique et les oscillations collectives des électrons libres à la surface du métal. Comme les dimensions considérées sont supérieures à la longueur d'onde de De Broglie (~ 1 nm), il n'y a pratiquement pas d'effet de taille sur la structure électronique et une description classique de la réponse optique est généralement suffisante.

Enfin, le comportement des matériaux **semi-conducteurs** est décrit par des excitons (ou paires électrons-trous). Leur extension est caractérisée par le rayon de Bohr, de l'ordre d'une dizaine de nanomètres ($\delta \sim 10$ nm). Ainsi, des nano-cristaux de semi-conducteur ($d \sim 10$ nm) présentent une réponse optique particulière. Leur structure électronique est également modifiée puisque celle-ci est régie par le comportement de l'exciton. Le confinement quantique qui apparaît dans les nanocristaux de quelques nanomètres conduit à une quantification de leurs niveaux d'énergie et donc à l'apparition des raies d'émission. On peut alors les qualifier d'atomes artificiels et les utiliser comme sources lumineuses calibrées (boîtes quantiques).

Interaction lumière-matière

La section efficace d'absorption caractérise l'efficacité de l'interaction lumière-matière. Pour une molécule fluorescente, elle est de l'ordre de $\sigma_{abs} \sim 10^{-20} \text{ m}^2$ à température ambiante à comparer à la surface d'un faisceau très focalisé, au mieux de l'ordre de $(\lambda/2)^2 \sim 10^{-13} \text{ m}^2$ dans le domaine visible donc étalé de plus de 7 ordres de grandeur que σ_{abs} . Cette inadéquation traduit les problèmes technologiques à surmonter pour obtenir des surfaces comparables. Leurs résolutions est un enjeu actuel majeur ; le prix Nobel 2014 a ainsi été décerné à E. Moerner, E. Betzig et S. Hell pour leurs travaux sur la nanoscopie [12, 13]. Plusieurs stratégies sont possibles pour augmenter l'efficacité d'interaction une molécule fluorescente et la lumière :

• augmenter la section efficace d'absorption. Dans la limite des très faibles températures (T < 10 K), celle-ci peut atteindre la valeur limite :

$$\sigma_{abs} = 3 \left(\frac{\lambda}{2\pi}\right)^2 \tag{1.1}$$

indiquant que la molécule peut absorber pratiquement toute l'énergie d'un faisceau focalisé.

• Augmenter le temps d'interaction. Le positionnement de la molécule à l'intérieur d'une cavité électromagnétique (cf. fig. 1.3.a) de grand facteur de qualité permet d'augmenter considérablement le temps d'interaction lumière-matière. Le couplage de l'émission à un mode de cavité accélère la cadence de la fluorescence (cf. fig. 1.3.b).



FIGURE 1.3 – (a) Spectre et facteur de qualité d'une microcavité optique réalisée à l'aide de miroir de Bragg (b). Q ~ 5000. Reproduit avec la permission de [14], APS, copyright 1998.
(c) Réponse temporelle d'une nanosource à la résonance (trait plein) et hors résonance (trait pointillé). Reproduit avec la permission de [15], IEEE Publication, copyright 1999.

• Confiner le champ d'excitation. Le confinement de la lumière sur des dimensions comparables à celle de la molécule permet d'augmenter la probabilité d'interaction. Travailler en deçà de la limite de diffraction est rendu possible grâce à l'optique de champ proche ou à l'utilisation de structures plasmoniques. Cette approche est privilégiée dans ce travail et est discutée dans les paragraphes suivants.

1.2 Nano-optique et spectroscopie de molécules uniques

1.2.1 Optique de champ proche et plasmonique

Microscopie optique en champ proche

La microscopie en champ proche optique (ou SNOM pour Scanning Near-field Optical Microscope) fait partie de la famille des microscopies à sonde locale (microscope à effet tunnel électronique-STM, microscopie à force atomique-AFM, ...) et s'est développée à partir des années 90 [10]. Il s'agit de mesurer les propriétés optiques de surface à des échelles sub-longueur d'onde. Les sondes de microscope optique en champ proche sont généralement classées en deux catégories :

- les sondes sans ouverture qui agissent comme un centre diffuseur du champ proche.
 Le champ diffusé peut alors être détecté en champ lointain donnant ainsi une mesure de l'intensité du champ proche (cf. fig1.4.a). [16]
- les sondes à ouverture qui reposent sur l'utilisation d'une fibre optique étirée métallisée sauf à son extrémité (cf. fig1.4.b). [17]

Il faut également noter que la nature du signal détecté dépend de la sonde mais aussi du mode d'imagerie : illumination ou détection en champ proche [19]. En effet, en mode détection, l'image mesurée est une cartographie de l'intensité du champ électrique ou du champ magnétique, tandis qu'en mode illumination, on obtient une cartographie de la densité locale d'état photonique (LDOS).



FIGURE 1.4 – (a) Sonde sans ouverture. Reproduit avec la permission de [17], AIP Publishing LLC, copyright 2003. (b) Sonde avec ouverture. Reproduit avec la permission de [18], OSA, copyright 2006.

Limite de diffraction et confinement lumineux

La microscopique optique en champ proche ou la manipulation de nano-objets peut s'effectuer grâce à une fibre optique étirée (cf. fig. 1.5.a). Le rayon de courbure à l'extrémité d'une fibre utilisée pour le champ proche ou la manipulation de nano-objets est typiquement de l'ordre de 50 à 100 nm et le champ électromagnétique peut parvenir à son extrémité car le mode HE_{11} d'une fibre à saut d'indice ne possède pas de coupure. En revanche, si le champ modal est bien confiné dans le coeur de la fibre pour des dimensions de l'ordre de la longueur d'onde, il s'étend largement hors de la fibre lorsque le rayon de celle-ci a des dimensions sub-longueur d'onde (cf. fig. 1.5.b).



FIGURE 1.5 – (a) Image d'une fibre optique étirée avec une rugosité très faible. Reproduit avec la permission de [20], AIP, copyright 1999. (b) Lignes de densité de puissance électrique d'une fibre optique étirée et excitée par le mode HE_{11} . Simulation à $\lambda = 488$ nm, reproduit avec la permission de [10], Cambridge University Press, copyright 2006.

En métallisant la fibre avec un film optiquement opaque de quelques dizaines de nanomètres tout en laissant l'ouverture à son extrémité, on arrive alors à confiner la lumière sur des dimensions comparables à celle de l'ouverture [21, 22]. Malheureusement, ce confinement se fait au détriment d'une faible transmission de la lumière [10].

La forme et le contrôle de la métallisation sont alors des éléments clefs pour optimiser le guidage et obtenir la meilleure luminosité à l'extrémité. Il faut trouver un compromis entre le confinement et l'intensité du signal en sortie de pointe. On utilise généralement des ouvertures de l'ordre de 100 nm [23].

Cela a conduit à chercher des solutions pour confiner efficacement une onde électromagnétique tout en conservant une intensité lumineuse suffisante. La plasmonique apporte une réponse originale à ce défi. En particulier, nous étudierons l'intérêt d'une fibre métallisée dans les chapitres 4 et 5.

Plasmonique

Les plasmons de surface sont des oscillations collectives d'électrons libres localisées à la surface d'un métal. Le mouvement de ces charges est alors accompagné d'une oscillation du champ électromagnétique qui est confiné sur quelques dizaines de nanomètres à la surface du métal. Ce mode résultant du couplage entre une onde électromagnétique et les charges libres du métal est appelé Plasmon Polariton de Surface (SPP). On distinguera cependant le SPP qui se propage et peut permettre le guidage optique sur quelques dizaines micromètres du plasmon de surface localisé (LSP) qui apparaît sur des nanoparticules. Ces derniers ne se propagent pas mais permettent le confinement tridimensionnel d'un champ électromagnétique (pour une revue voir le livre [24]). Nous rappelons ici les principales propriétés des SPP.

La figure 1.6.a illustre les principales caractéristiques des plasmons de surface. Par exemple, une interface plane métal/diélectrique supporte un plasmon délocalisé confiné à la surface et se propageant sur quelques dizaines de micromètres le long de l'interface. Il s'agit d'un mode guidé dont la constante de propagation $k_{\rm SPP} = n_{\rm SPP} k_0$ (où $n_{\rm SPP}$ est l'indice effectif du mode) est supérieure au vecteur d'onde accessible dans le milieu d'indice $n: (k_{\text{SPP}} > n\omega/c)$. Ceci impose également le confinement sub-longueur d'onde dans la partie diélectrique, puisque le vecteur d'onde vérifie : $(n_1k_0)^2 = k_{\text{SPP}}^2 + k_{\perp}^2$. Ainsi, l'extension spatiale dans la partie diélectrique est gouvernée par un vecteur imaginaire pure $k_{\perp} = i/\delta$, où δ est la distance caractéristique de confinement dans le milieu diélectrique donnée par $\delta = \lambda/(2\pi\sqrt{n_{\rm SPP}^2 - n^2})$. Ceci montre qu'un indice effectif élevé du plasmon conduit à un fort confinement ($\delta \ll \lambda$). Toutefois, ce confinement sub-longueur d'onde est obtenu au détriment de pertes Joule importantes dans le métal. Par ailleurs, l'excitation d'un tel mode est mal aisée en raison de son vecteur d'onde élevé et nécessite d'utiliser une onde évanescente (excitation dipolaire, champ proche optique, ...) ou d'utiliser une onde diffractée (diffusion sur un défaut ou un réseau de couplage). L'intensité du champ électrique est alors localement 10 fois supérieure à celle du champ d'excitation. Ce comportement est à la base d'applications telles que

- les capteurs bio-chimiques par résonance de plasmon de surface (SPR);

- les guides plasmoniques pour la photonique intégrée [27, 6, 9]. Ces guides apparaissent comme le chaînon manquant entre la microélectronique et la photonique intégrée. Ils permettraient de combiner la miniaturisation et une large bande passante.

La figure 1.6.b illustre les plasmons localisés supportés par une nanoparticule métallique. Le confinement lumineux est cette fois sub-longueur d'onde dans les 3 dimensions. Certains modes localisés (comme le mode dipolaire) sont radiatifs assurant un couplage efficace entre champ proche et champ lointain. Ceci est à la base du concept de nano-



FIGURE 1.6 – (a) Image d'un plasmon délocalisé à l'interface argent/air, reproduit avec la permission de [25], APS, copyright 1993. (b) Principe de mesure de l'énergie du champ proche à la surface du métal. (c) Image par spectroscopie des pertes d'énergies d'électron (Electron Energy Loss Spectroscopy) d'un plasmon localisé. (d) Principe de la mesure de l'énergie perdue d'un faisceau d'électrons focalisé sur un prisme métallique. Reproduit avec la permission de [26], Macmillan Publishers, copyright 2007.

antenne optique [28, 29]. D'autre part, le fort confinement lumineux associé à une intensité importante du champ électromagnétique conduit à un couplage efficace avec des émetteurs à l'origine des spectroscopies exaltées [30] (SERS - Surface enhancement Raman Scattering/Spectroscopy , ou MEF-Metal Enhancement Fluorescence)

Sondes plasmoniques pour le champ proche optique

Le fort confinement des modes plasmons localisés permet de s'affranchir de la limite de diffraction et motive leur utilisation comme sonde locale du champ proche optique. Une nano-particule métallique accrochée à l'extrémité d'une sonde locale (type AFM) constitue ainsi un centre diffuseur extrêmement efficace pour réaliser une sonde sans ouverture. Cependant, ceci impose de travailler à la résonance plasmon de la nano-particule et limite le champ d'application. L'utilisation de l'effet de pointe est en général privilégié puisqu'il aboutit à la formation d'un champ électromagnétique intense et confiné à l'extrémité d'une nano-particule métallique (même sans résonance plasmon). Cette configuration est à la base des spectroscopies exaltées dans une jonction pointe-surface (Tip-Enhanced Surface Spectroscopies), elle permet un contrôle très fin de l'émission de fluorescence [31] ou de la diffusion Raman [32] par contrôle nanométrique de la distance pointe surface. Par ailleurs, le fort confinement du champ lumineux permet aussi de piéger des nanoparticules par les forces de gradient de champ ainsi créées et permet la manipulation de nano-objets [33, 34].

Le centre diffuseur n'est pas très directif et d'autres configurations ont donc été proposées pour augmenter l'efficacité de collection (ou d'excitation) du signal champ proche optique. Parmi les options étudiées dans la littérature, citons la réalisation de nano-antennes optiques à l'extrémité d'une fibre optique étirée [20, 35]. Cette configuration permet un couplage efficace dans la fibre optique mais est particulièrement difficile à réaliser et la structure doit être dimensionnée selon la longueur d'onde d'étude.



FIGURE 1.7 – Simulation du champ électrique longitudinal E_z le long d'une pointe d'argent dans l'air. longueur d'onde $\lambda = 800nm$, $\varepsilon_{Ag}(800nm) = -31 + 0,409i$. La propagation du plasmon et son confinement en bout de pointe sont clairement visibles.

Une autre approche est possible. Il s'agit d'associer un plasmon propagatif (SPP) et l'effet de pointe pour propager le signal dans une direction donnée et le confiner sur des dimensions nanométriques. Par exemple, une pointe métallique supporte un mode plasmon à l'interface métal/air qui devient très confiné à son extrémité (cf. figure 1.7).

L'excitation et la détection du mode plasmon propagatif n'est pas aisée. Deux approches originales ont été proposées. La première consiste à métalliser une fibre optique étirée et à graver un réseau de couplage sur le film métallique [36] (cf. figure 1.8.a). Cette configuration conduit à la formation d'un champ confiné sur des dimensions de l'ordre de la dizaine de nanomètres et permet des études spectroscopiques à l'échelle de la molécule unique et sur des échelles de temps de quelques femtosecondes mais sa fabrication est difficile. Enfin Bouhelier et Novotny ont proposé dès 2003 une sonde plasmonique constituée d'une fibre optique étirée et recouverte d'une fine couche métallique. Ils ont montré numériquement un couplage efficace du mode de fibre (mode interne) vers le plasmon se propageant à la surface extérieure de la fibre métallisée (cf. figure 1.8.b). Il s'ensuit un fort confinement lumineux à l'extrémité de pointe [37]. Nous étudierons en détail une configuration similaire aux chapitres 4 et 5.



FIGURE 1.8 – a) Excitation d'un plasmon propagatif par réseau de couplage et exaltation en bout de pointe. Reproduit avec la permission de [36], American Chemical Society, copyright 2007. b) Excitation d'un plasmon par couplage entre un mode de fibre et mode plasmonique, principe et simulation. Reproduit avec la permission de [37], WILEY, copyright 2003.

Cette configuration est à rapprocher de la réalisation expérimentale de Fischer *et al.* démontrant une forte exaltation et un excellent taux de collection du signal Raman dans une jonction pointe-surface où la pointe est un prisme de verre recouvert d'une fine couche d'or [38, 39].

1.2.2 Contrôle de nanosources optiques

En permettant l'étude spectroscopique à l'échelle de la molécule unique, la nanooptique et la plasmonique ont ouvert la voie à une meilleure compréhension du comportement lumière-matière mais aussi ont fait apparaître des comportements nouveaux.

Temps de relaxation

En particulier, les propriétés d'émission dépendent de l'environnement de l'émetteur. La figure 1.9 représente de la diagramme d'énergie d'un système moléculaire. L'état fondamental est l'état électronique singulet S_0 et sous l'effet d'une excitation optique, le système passe dans l'état excité S_1 . Après relaxation vibrationnelle, le système retourne à son état fondamental avec émission de fluorescence.

En premier lieu, le taux d'émission de fluorescence Γ est gouvernée par la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma = \frac{2\pi\omega_{em}}{\hbar\varepsilon_0} |p_0|^2 \rho_{\boldsymbol{u}}(\boldsymbol{r}, \omega_{em})$$
(1.2)



FIGURE 1.9 - a) Diagramme d'énergie expliquant le principe de la fluorescence. b) exemple de spectres d'absorption et d'émission de la GFP (Green Florescent Protein).

où ω_{em} et ε_0 sont respectivement la pulsation d'émission et la permittivité du vide, p_0 est le moment dipolaire de la molécule orienté selon \boldsymbol{u} à la position \boldsymbol{r} . Le terme $\rho_u(\boldsymbol{r}, \omega_{em})$ est la densité d'état photonique à la position du dipole et selon son orientation. En particulier, dans le vide, le facteur Γ devient :

$$\Gamma_0 = \frac{|p_0|^2 \omega_{em}^3}{3\pi\varepsilon_0 \hbar c^3}$$

Ce facteur donne l'élargissement du niveau électronique excité. Cependant, il faut aussi tenir compte de la sous-structure vibrationnelle des états électroniques S_0 et S_1 . La relaxation vibrationnelle au sein d'un niveau dépend évidemment de l'interaction du système avec le « bain » de modes du milieu environnant. Par conséquent, les niveaux vibrationnels impliqués dépendent fortement de l'environnement du système moléculaire.

Ainsi, dans une matrice, chaque molécule ayant un environnement différent, la transition met en jeu des niveaux vibrationnels différents et une mesure de Γ sur un ensemble de molécules donne un élargissement dit inhomogène, traduisant l'effet de l'environnement.

Par contre, une mesure de la durée de vie $(1/\Gamma)$ d'une molécule individuelle permettra de déterminer l'élargissement homogène (celui de cette molécule dans son environnement) qui sera différent d'une molécule à une autre. Dans ce contexte, la molécule constitue une sonde locale de son environnement [40].

Finalement, on peut modéliser l'émission de fluorescence par un système à deux niveaux. En analogie avec la RMN (équations de Bloch optique), on distingue deux temps de relaxation

- le temps de relaxation longitudinal T_1 associé à la dynamique du niveau excité (population);
- le temps de relaxation transverse T₂, associé au dipole de transition (cohérence).

Si on néglige les interactions avec l'environnement (collisions, interaction avec les phonons de la matrice), on peut montrer que ces deux temps vérifient $T_2 = 2T_1$. Cependant, les interactions avec l'environnement conduisent à un déphasage aléatoire entre deux émissions de photons (phénomène de décohérence). On a alors :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \gamma^*$$

où γ^* traduit le déphasage introduit par exemple par des collisions avec le milieu extérieur. La plupart du temps, $T_2 \ll T_1$. Pour un cristal de rubis : $T_1 \sim ms$ et $T_2 \sim fs$. Ainsi, la cohérence initiale entre les deux niveaux (associé à la dynamique du dipole de transition) est perdue très rapidement [41]. C'est un point essentiel qu'il faut considérer lorsque l'on veut réaliser des expériences ou dispositifs reposant sur les propriétés quantiques des nanosources optiques (cf. section suivante).

Sources de photons uniques

Les expériences de spectroscopie de molécules uniques ont fait apparaître des propriétés originales sur l'émission, citons notamment l'émission de photons uniques. En effet, lorsque l'on étudie des cycles d'excitation/ émission sur une seule molécule, on se rend compte que celle-ci ne peut émettre les photons que un par un. La durée moyenne entre deux émissions dépend du temps d'excitation (inverse de la pulsation de Rabi) et du temps d'émission (inverse du taux de fluorescence). On parle alors de dégroupement de photons. Ces sources de photons uniques sont à la base de protocoles de cryptographie quantique.



FIGURE 1.10 – (a) Diagramme d'énergie d'une molécule fluorescente avec état triplet. (b) Visualisation par comptage de photon de la scintillation d'un échantillon de molécules fluorescentes excitées (i) et suppression de la scintillation par présence d'une couche métallique (ii). Reproduit avec la permission de [42], IOP Science, copyright 2007.

Toutefois, il peut apparaître aussi un phénomène opposé appelé groupement de photons. En effet, l'état triplet joue un rôle important lors des cycles d'excitation-émission (cf. fig. 1.10.a). Son effet sur l'émission d'une molécule fluorescente est négligeable au premier abord car les transitions singulet-triplet sont censées être interdites puisqu'elles correspondent à un changement de spin. Cependant, des couplages spin-orbites peuvent conduire à des croisements intersystèmes (ISC) et donc une transition $S_1 - T_1$. Bien que la probabilité de cette transition soit faible, son apparition entre en compétition avec la fluorescence. La transition $T_1 - S_0$ permet de retourner à l'état fondamental (phosphorescence). La durée de vie du niveau T_1 est plus grande que celle S_1 et à l'échelle de la molécule unique, ceci se traduit par un groupement de photons : l'émission de fluorescence se produit puis semble s'arrêter pendant un certain temps (phosphorescence) avant de reprendre. Ceci se traduit par un scintillement de la nanosource que l'on veut éviter. Ce scintillement peut être diminué grâce à une structure plasmonique (cf. fig. 1.10.b). Par couplage au plasmon, le temps de vie du niveau excité (T_1) diminue ce qui a pour effet d'augmenter la cohérence entre les niveaux d'énergie (γ^* négligeable) et ainsi peut permettre la réalisation de sources de photons indiscernables.

Nano-sources optiques, boîtes quantiques

Une nanosource optique peut être simplement une molécule fluorescente ou un ion (Rh6G,DiD, terres rares...) mais cela pose la difficulté de la synthèse de système moléculaire stable (pas de vieillissement ni de scintillement), émettant à une longueur d'onde choisie et présentant un fort rendement quantique. De nombreux progrès ont été obtenus, notamment dans le contexte des biomarqueurs ou des milieux lasers. Cependant, une véritable ingénierie des nanosources s'est aussi développée autour des nanocristaux de semi-conducteur (boîtes quantiques). En effet, lorsque la taille d'un nanocristal de semiconducteur est proche du rayon de l'exciton (soit 1 à 10 nm), il se produit un effet de confinement quantique aboutissant à des états discrets d'énergie et donc des spectres de raies semblables à ceux des molécules fluorescentes.



FIGURE 1.11 – a) Nano structures de GaAs épitaxiées. Reproduit avec la permission de [43], APS, copyright 1988. b) Spectres d'absorption pour différentes tailles de nanostructures de CdSe.

On peut alors réaliser des nanosources émettant à des longueurs d'ondes choisies (fonction du diamètre des nanocristaux) et stables. Ces boîtes quantiques sont généralement obtenues par épitaxie ou synthèse colloïdale permettant d'obtenir une immensité de boîtes quantiques.

Contrôle de l'émission de fluorescence

La réalisation de nanosources optiques efficaces est un enjeu majeur avec des applications telles que

- le biomarquage;
- la théranostique (imagerie et thérapie par photodynamique);
- la cryptographie quantique;
- des nanosources intégrées sur puce...

Les différents paramètres à optimiser dépendent des applications envisagées : la stabilité, le rendement quantique, le taux de collection, la diminution du scintillement, la cohérence de l'émission, etc... Ceci peut se faire en travaillant sur la synthèse de sources fluorescentes [44]. Une seconde approche consiste à travailler sur l'interaction entre l'émetteur et son environnement pour contrôler les propriétés d'émission.

Les premiers résultats dans ce domaine furent obtenus en plaçant des émetteurs dans une microcavité optique [11].

En effet, dans le cas d'une cavité optique monomode, la règle d'or de Fermi (eq. 1.2) se réduit au facteur de Purcell

$$F_{\rm P} = \frac{\Gamma}{\Gamma_0} = \frac{3}{4\pi^2} \left(\frac{\lambda}{n_1}\right)^3 \frac{Q}{V_{eff}}$$
(1.3)

où λ est la longueur d'onde d'émission dans le vide, n_1 l'indice du milieu, Q le facteur de qualité de la cavité et V_{eff} le volume effectif du mode.

En plaçant un émetteur dans une microcavité présentant un grand facteur de qualité, on aboutit à une forte augmentation du taux d'émission. Par conséquent, il est possible d'augmenter la cadence de l'émission de photons uniques (cf. fig. 1.3).

Plus généralement, l'exaltation de l'interaction lumière matière dans une cavité permet de réaliser des dispositifs optiques efficaces (non-linéarité, laser bas seuil [45]) et originales comme le blocage de photon [46].

Cependant le volume effectif d'une microcavité est limité par la diffraction autour de $(\lambda/n)^3$ au mieux. Ceci conduit à proposer de remplacer le mode cavité par un plasmon de surface dont le confinement n'est pas limité à priori.

Depuis les travaux pionniers de Drexhage à la fin des années 70, de nombreuses études ont permis de comprendre puis de contrôler l'émission de fluorescence par couplage à des nanostructures plasmoniques. Lorsqu'un émetteur dipolaire est placé à proximité d'une telle structure, les différents canaux de relaxation depuis l'état excité vers l'état fondamental sont :

- l'émission de fluorescence (taux radiatif noté Γ_{rad});
- l'excitation d'un plasmon dans la nanostructure;
- un transfert non-radiatif vers le métal (taux non-radiatif noté Γ_{Nrad}).

La distinction entre ces trois canaux n'est pas toujours simple et sera discutée en détail dans le chapitre 2. Toutefois, nous pouvons déjà indiquer que la contribution de ces différents canaux dépend fortement de la distance émetteur-structure mais aussi de la nature même de la nanostructure plasmonique. Des études récentes ont ainsi montré la possibilité d'exalter l'émission de fluorescence et l'efficacité de collection par couplage à des nanostructures [47, 48, 49, 50, 51], ceci a conduit à faire une analogie entre cavité optique et cavité plasmonique [52] (cf. figure 1.12).



FIGURE 1.12 – a) Image MEB d'un miroir de Bragg Plasmonique, b) Cavité plasmonique. Reproduit avec la permission de [52], APS, copyright 2014. Il est même possible de modifier la dynamique interne de la relaxation moléculaire en modifiant les probabilités de transfert vers l'état triplet au profit de l'émission de fluorescence [53, 54].

À terme, on peut imaginer d'accélérer suffisamment le taux d'émission Γ_1 pour atteindre le régime où $T_2 = 2T_1$ (comme discuté précédemment cf. fig 1.10). Dans ce régime, les photons émis successivement sont indiscernables, ouvrant ainsi la voie à la réalisation d'expériences d'optiques quantiques à température ambiante.

1.2.3 Couplage de nanosources

Puisqu'un émetteur peut être couplé efficacement à un SPP, on peut aussi imaginer contrôler le couplage entre 2 émetteurs via un SPP (RET : transfert d'énergie résonant assisté par SPP). Le RET permet le transfert d'énergie entre deux molécules très proches et conduit à l'émission de photons. Ce principe est très utilisé en biologie pour étudier les interactions et repliements des protéines (FRET : Förster Resonance Energy Transfer). Ce phénomène décroît très rapidement avec l'éloignement des molécules et n'opère que pour de distances inférieures à 10 nm.

La présence d'une fibre optique de faible rayon à proximité des deux émetteurs permet alors de guider l'énergie émise de façon radiative et de la transférer d'une molécule à l'autre à la manière d'un télégraphe [55]. Le couplage s'effectuant par la portion du champ modal extérieure à la fibre optique, il est normal de s'intéresser au couplage par un guide plasmonique puisque le champ est par essence extérieur au guide. Le principe de ce transfert est représenté figure 1.13.a ainsi que la forme des différentes structures envisagées (fig. 1.13.b) [56, 57].

La compréhension des phénomènes de couplage à un guide plasmonique est alors primordiale pour favoriser le couplage tout en limitant les pertes métalliques. Nous discuterons plus en détail ces aspects dans le chapitre 3.



FIGURE 1.13 – (a) Principe du RET (Resonant Energy Transfer) par plasmon interposé. (b) exemples de nanostructures possibles avec leur profil modal. Adapté avec la permission de [56], American Chemical Society, copyright 2010.

Par ailleurs, lorsque les deux molécules sont dans leur état excité, la présence d'une structure guidante modifie considérablement la nature des émetteurs et il est nécessaire de les considérer comme une seule et même entité où les deux molécules peuvent émettre de façon coopérative. Le couplage permet alors de favoriser (on parle alors de superradiance) ou de défavoriser (subradiance) l'émission de photon [58, 59, 55, 60]. Ce phénomène est la source d'un intérêt croissant [61, 62] avec à la clef de nombreuses applications comme la réalisation de portes logiques nano-optiques ou l'intrication de qubits.

Conclusion

Pour conclure, le fort confinement modal des plasmons apporte une solution originale à la spectroscopie de molécules uniques. De plus, en profitant des propriétés soit de confinement des plasmons localisés soit de guidage des plasmons délocalisés, on peut adresser et contrôler finement des nanosources optiques à température ambiante.

Enfin, la nature électromagnétique des SPP permet d'envisager le couplage avec la photonique ou l'optique fibrée comme nous le discuterons au dernier chapitre.

Chapitre 2

Couplage d'un émetteur à un nanofil plasmonique

Introduction

Plusieurs stratégies ont été envisagées pour contrôler et manipuler l'émission d'une nanosource optique. La terminologie de l'électrodynamique en cavité (cQED) est particulièrement utile pour comprendre les phénomènes physiques mis en jeu.

Le taux d'émission d'un émetteur placé dans une microcavité optique est régi par le facteur de Purcell. Celui-ci révèle que le couplage entre l'émetteur et un mode de la cavité dépend du rapport Q/V_{eff} où Q est le facteur de qualité et V_{eff} le volume du mode.

Dans une microcavité optique, on peut atteindre des facteurs de qualité de l'ordre de 10^{10} , toutefois au détriment d'un volume modal limité par la diffraction [11].

Il a aussi été proposé d'utiliser des volumes à la limite de la diffraction en couplant des atomes uniques à une fibre étirée [63]. Afin de réduire encore la taille des dispositifs, l'utilisation de plasmon est prometteuse [64].



FIGURE 2.1 – Plasmon de surface induit par l'émission d'un dipole p à une distance dd'un nanofil d'or. L'intensité du champ modal est représentée à un instant donné (voir expression table 2.1). ε_2 et ε_1 sont respectivement les permittivité du guide et du milieu extérieur.

Des nanofils métalliques comme présenté fig. 2.1, définissent des guides d'onde unidimensionnels avec des applications possibles pour les circuits optiques intégrés. Par exemple, la propagation de plasmon peut être contrôlée par un émetteur unique permettant ainsi de réaliser un transistor optique à photon unique [65].

Il est également possible de coupler deux émetteurs distants par un guide plasmonique ce qui conduit à des transferts d'énergie résonants [56], permettant de commander des qubits intriqués [66, 62] ou de réaliser des portes logiques nano-optiques [57]. Dans le régime de couplage faible, l'interaction émetteur-plasmon est régie par la règle d'or de Fermi et dépend donc de la densité de modes plasmons à la position de l'émetteur. Nous présenterons donc dans ce chapitre la relation de dispersion d'un cylindre métallique pour introduire la densité locale de modes. Nous expliquerons comment l'obtenir grâce au formalisme du tenseur de Green afin d'évaluer le taux de couplage entre un émetteur dipolaire et un guide plasmonique. Ce formalisme permet alors de distinguer les différentes contributions à ce taux : les contributions radiative, non-radiative et plasmonique. En particulier, cela nous amènera à généraliser la notion de facteur de Purcell en présence d'un guide d'onde unidimensionnel en présence de pertes.

2.1 Relation de dispersion et densité de modes guidés

Afin de détailler les différents canaux de relaxation d'un dipôle à proximité d'un guide plasmonique, nous introduisons le concept de densité locale de modes en lien avec la densité de modes guidés d'un cylindre métallique.



FIGURE 2.2 – Relation de dispersion d'un nanofil d'or de rayon 100 nm en l'absence (a) ou présence (c) de pertes. L'asymptote horizontale pour $\omega = 3, 7 \times 10^{15} \, s^{-1}$ correspond à la limite du régime quasistatique $\varepsilon_2(\omega) + \varepsilon_1 = 0$. b) DOS du mode TM₀₁ déduit de $dk_z/d\omega$ (en l'absence de perte) d) Comparaison de la longueur de propagation (L_{SPP}) à la période spatiale (λ_{SPP}) pour le mode TM₀₁. La zone grisée correspond à une longueur de propagation plus petite que la période d'oscillation. La constante diélectrique est tirée de [67], celle du milieu extérieur vaut $\varepsilon_1 = 2, 25$.

Les solutions propagatives des équations de Maxwell font intervenir des fonctions de Bessel cylindriques [68, 69] et sont répertoriées dans le tableau 2.1 où les coefficients a_i sont complexes et indéterminés. On note k_z le vecteur d'onde et $k_{i,\perp} = (\varepsilon_i k_0^2 - k_z^2)^{1/2}$ les composantes perpendiculaires à la propagation avec $k_0 = \omega/c$. Les propriétés magnétiques des matériaux sont négligées. Pour chacun des champs, on suppose une dépendance temporelle implicite de la forme $e^{i\omega t}$.

TABLE $2.1 -$	Forme	des	modes	\mathbf{TM}	supportés	par	un	cylindre	métallic	que

metal	milieu extérieur
$\mathbf{E}_z(r) = a_1 \mathbf{J}_0(k_{2,\perp} r)$	$\mathbf{E}_{z}(r) = a_2 \mathbf{K}_0(k_{1,\perp} r)$
$\mathbf{E}_r(r) = i \frac{k_z}{k_{2,\perp}} a_1 \mathbf{J}_0'(k_{2,\perp} r)$	$\mathbf{E}_r(r) = i \frac{k_z}{k_{2,\perp}} \mathbf{K}_0'(k_{1,\perp}r)$
$\mathbf{H}_{\theta}(r) = i \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \frac{\varepsilon_{2\omega}}{k_{2,\perp}} a_1 \mathbf{J}_0'(k_{2,\perp}r)$	$\mathbf{H}_{\theta}(r) = i \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \frac{\varepsilon_1 \omega}{k_{1,\perp}} a_2 \mathbf{K}'_0(k_{1,\perp}r)$

La continuité du champ électrique longitudinal et celle du champ magnétique orthoradial conduit à l'équation suivante [70] :

$$\frac{\varepsilon_2 k_0^2}{k_{2\perp}} \frac{J_0'(k_{2\perp}R)}{J_0(k_{2\perp}R)} - \frac{\varepsilon_1 k_0^2}{k_{1\perp}} \frac{H_0'(k_{1\perp}R)}{H_0(k_{1\perp}R)} = 0$$
(2.1)

Sa résolution dans le plan complexe permet d'obtenir la constante de propagation complexe k_z .

La figure 2.2.a représente la relation de dispersion $\omega = f(k_z)$ du mode fondamental (TM₀₁) d'un nanofil plasmonique d'or en l'absence de pertes (Im $\varepsilon_2 = 0$).

Un plasmon polariton de surface (SPP) est le résultat d'un couplage entre une onde lumineuse et un plasmon de surface, ainsi, à basse fréquence, la relation de dispersion suit la droite de lumière définie par $\omega = ck_z/n_1$. À hautes fréquences, la relation de dispersion suit une asymptote horizontale correspondant à la limite définie par $\varepsilon_2(\omega) + \varepsilon_1 = 0$. Cette résonance plasmon s'obtient alors pour $\omega_{\text{SPP}} = 3, 5.10^{15} \text{ rad.s}^{-1}$ soit $\lambda = 525 \text{ nm}$. Le comportement du plasmon est alors dit "quasi-statique" avec une vitesse de groupe nulle $d\omega/dk_z \rightarrow 0$. L'étude détaillée du comportement quasi-statique sera traitée dans le chapitre 3.

La densité de modes guidés, proportionnelle à $dk_z/d\omega$, est représentée fig. 2.2b. On observe une forte accumulation de modes à la résonance plasmon aux alentours de $\omega =$ $3.5 \ 10^{15} \ rad.s^{-1}$. Ces derniers s'apparentent aux modes localisées quasistatiques d'une nano-particule [71]. Au delà de cette pulsation, le nanofil ne supporte aucun mode SPP.

En présence de pertes, la relation de dispersion doit être résolue dans le plan complexe $(k_z = k'_z + ik''_z)$. En utilisant la méthode de Newton-Raphson, on obtient la relation de dispersion $\omega = f(k'_{SPP})$ représentée sur la figure 2.2.c. On observe une modification de l'allure de la relation de dispersion, surtout à proximité de l'asymptote quasistatique [72]. La longueur de propagation est représentée fig. 2.2.d et est comparée à la longueur d'onde. On remarque que le domaine voisin de l'asymptote quasistatique correspond à des « quasimodes » dont le temps de vie est plus court qu'une période d'oscillation. Le concept de modes devient alors caduque.

Cependant, ces quasi-modes sont utiles pour décrire le couplage avec un émetteur. Malgré une distance de propagation très faible au voisinage de la limite quasi statique, le mode plasmon est extrêmement confiné sur une distance transverse définie par $\delta_{\text{SPP}} \sim 1/(k_z^2 - \varepsilon_2 k_0^2)^{1/2}$ avec $k_z \gg k_0$. Le volume modal est alors minuscule et le couplage à un émetteur quantique dans son voisinage est favorisé [69, 73]. Cependant ce couplage correspond à un transfert d'énergie non radiatif qui inhibe la fluorescence.

Ainsi selon le comportement du plasmon de surface (propagatif à basse fréquence et quasistatique à haute fréquence), il est possible de le guider ou le confiner sur des échelles inférieures à la longueur d'onde. La figure 2.2.c. contient également la relation de dispersion du mode HE_{11} . Nous verrons plus loin que ce dernier intervient également lors du couplage entre un émetteur et un guide mais sa structure est différente du mode TM_{01} .



FIGURE 2.3 – (a) Relation de dispersion d'un nanofil d'or en fonction de son rayon R dans un milieu de permittivité $\varepsilon_1 = 2, 25$. (b) Profil du champ modal |E| pour le mode TM₀₁ (i) et HE₁₁ (ii) pour un rayon R = 60 nm. (c) Profil du champ E_z pour un rayon R = 60 nm. La longueur d'onde d'étude est $\lambda = 800$ nm.

La figure 2.3 montre le profil modal des deux modes TM_{01} et HE_{11} . Ce dernier est très peu confiné, son extension hors du guide décroît faiblement en 1/r (cf.[69]). On peut estimer la distance caractéristique d'extension du mode par la composante orthogonale du vecteur d'onde : $\delta \sim 1/|k_{1\perp}|$. On obtient pour chacun des modes : $\delta_{HE_{11}} \sim 750$ nm contre $\delta_{TM_{01}} \sim 100$ nm. Nous verrons plus loin que la contribution de mode HE_{11} au couplage émetteur-nanofil plasmonique est faible.

2.2 Densité locale de modes

2.2.1 2D-LDOS

Pour discuter de la relaxation d'un émetteur, il est utile de considérer la densité locale de modes qui décrit la densité de modes photoniques accessibles en un point donné de l'espace. La densité locale de modes peut être obtenue à partir du tenseur de Green en 2D selon la relation [74, 75] :

$$\rho(\boldsymbol{r})^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//},k_z) = -\frac{2k_z}{\pi} \mathrm{Im} \mathrm{Tr} \varepsilon \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//},\boldsymbol{r}_{//},k_z)$$
(2.2)

Pour un guide infini, le tenseur de Green noté $\mathbf{G}^{2\mathrm{D}}$ peut être défini comme la réponse du système à une excitation ligne de courant \mathbf{J} située à une position $r_{//}^0$ (cf. fig. 2.4). Le champ électrique rayonné à la position $r_{//}$ est alors donné par

$$\mathbf{E}^{\text{2D}}(\boldsymbol{r}_{//}) = \frac{k_0^2}{\varepsilon_0} \mathbf{G}^{\text{2D}}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^0, k_z).\mathbf{J}$$
(2.3)



FIGURE 2.4 – Structure guidante 2D.

 $\mathbf{G}^{2\mathrm{D}}$ est un tenseur de rang 3 qui est calculé pour chaque couple de points $(\mathbf{r}_{//}, \mathbf{r}_{//}^0)$. Il est obtenu par résolution de l'équation auto-cohérente de Dyson [76, 77].

$$\mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\mathbf{r}_{//}, \mathbf{r}_{//}^{0}, k_{z}) = \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{ref}(\mathbf{r}_{//}, \mathbf{r}_{//}^{0}, k_{z}) + \dots$$
(2.4)
$$\dots k_{0}^{2} \int_{guide} \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{ref}(\mathbf{r}_{//}, \mathbf{r}_{//}', k_{z}) \big(\varepsilon_{ref} - \varepsilon\big) \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\mathbf{r}_{//}', \mathbf{r}_{//}^{0}, k_{z}) \mathrm{d}\mathbf{r}_{//}'$$

où l'indice "ref" indique la structure de référence composée par le milieu extérieur sans le guide. Lorsque le milieu de référence est homogène ou constitué d'un système multicouche, $\mathbf{G}_{ref}^{2\mathrm{D}}$ est analytique [78]. Le tenseur de Green associé au système complet est obtenu en discrétisant l'équation de Dyson.

$$\mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//},\boldsymbol{r}_{//}^{0},k_{z}) = \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{ref}(\boldsymbol{r}_{//},\boldsymbol{r}_{//}^{0},k_{z}) + \dots$$
(2.5)
$$\dots k_{0}^{2} \sum_{\mathrm{Cellules}} \widetilde{\mathbf{G}}^{\mathrm{2\mathrm{D}}}_{ref}(\boldsymbol{r}_{//},\boldsymbol{r}_{//}^{\prime},k_{z}) \big(\varepsilon_{ref}-\varepsilon\big) \mathbf{G}^{\mathrm{2\mathrm{D}}}(\boldsymbol{r}_{//}^{\prime},\boldsymbol{r}_{//}^{0},k_{z})$$

où $\widetilde{\mathbf{G}}_{ref}^{2\mathrm{D}}(\mathbf{r}_{//},\mathbf{r}_{//}',k_z)$ indique que les variations du tenseur de Green sur une cellule sont prises en compte dans le calcul comme expliqué en annexe A ($\widetilde{\mathbf{G}}_{ref}^{2\mathrm{D}} = \int_{cellule} \mathbf{G}_{ref}^{2\mathrm{D}} \mathrm{dS}$) [79].

Pour caractériser le rôle du guide seul, le tenseur de Green 2D est décomposé en deux contributions, l'une correspondant au milieu extérieur noté \mathbf{G}_{ref}^{2D} et l'autre correspondant au guide noté $\Delta \mathbf{G}^{2D}$

$$\mathbf{G}^{2\mathrm{D}} = \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{ref} + \Delta \mathbf{G}^{2\mathrm{D}} \tag{2.6}$$

Cette décomposition permet ainsi d'isoler la structure guidante du système de référence dont la formulation est analytique pour un milieu homogène ou un système multicouche.

On s'interesse ensuite à la modification de la densité locale d'état photonique en présence du guide (notée $\Delta \rho^{2D}$), au point $\mathbf{r}_{//}$, pour l'intervalle de propagation $[k_z, k_z + dk_z]$. Cette valeur est obtenue à partir de la différence entre G^{2D} et G_{ref} [80] :

$$\Delta \rho^{\rm 2D}(\boldsymbol{r}_{//}, k_z) = -\frac{2k_z}{\pi} \mathrm{Im} \mathrm{Tr} \varepsilon \Delta \mathbf{G}^{\rm 2D}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}, k_z)$$
(2.7)

Les variations de la LDOS partielle $\Delta \rho^{2D}$ sont représentées fig. 2.5 pour un nanofil d'or de rayon R plongé dans un milieu homogène d'indice n = 1. On observe deux maximas locaux qui suivent les relations de dispersion des modes guidés HE_{11} et TM_{01} (voir aussi fig. 2.2.c).



FIGURE 2.5 – 2D-LDOS partielle radiale à une distance R/2 de la surface d'un nanofil d'or de rayon R. Les lignes blanches en surimpression sont les relations de dispersion pour les modes HE_{11} et TM_{01} .

Pour étudier l'influence de la polarisation des modes, on peut également définir la densité locale d'état photonique partielle (P-LDOS), exprimant la probabilité d'existence d'un champ de polarisation donnée :

$$\Delta \boldsymbol{\rho}_{tot}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//},k_z) = \Delta \boldsymbol{\rho}_r^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//},k_z) + \Delta \boldsymbol{\rho}_{\theta}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//},k_z) + \Delta \boldsymbol{\rho}_z^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//},k_z)$$
(2.8)

Les deux modes vus ci-dessus n'ayant pas la même polarisation, leur contribution à la LDOS partielle n'est pas la même selon l'orientation choisie.

On remarque ainsi (cf. fig. 2.6) que le pic plasmon disparaît pour la contribution orthoradiale de la 2D-LDOS. En effet, le mode plasmon est un mode TM ne présentant pas de contribution orthoradiale de champ électrique. Pour les orientations radiale et longitudinale, les pics des deux modes sont présents.



FIGURE 2.6 – Profil de la 2D-LDOS partielle à 33 nm de la surface d'un nanofil d'or de rayon R = 100 nm plongé dans un milieu d'indice 1, 5. (a) polarisation radiale, (b) polarisation orthoradiale, (c) polarisation longitudinale.

2.2.2 Caractéristiques des modes

Les variations de la 2D-LDOS sont caractéristiques d'une résonance à proximité d'un mode guidé. Ceci permet d'établir les propriétés de ce mode à partir du profil de la 2D-LDOS. En effet, elle présente en général un profil Lorentzien centré sur le vecteur d'onde de propagation k_{SPP} et de demi-largeur à mi-hauteur notée $\Delta k = 1/2 L_{\text{SPP}}$, proportionnelle aux pertes [80]

$$\Delta \boldsymbol{\rho}_{\boldsymbol{u}}^{\text{2D}}(\boldsymbol{r}_{//}, k_z) = \frac{\Delta \boldsymbol{\rho}_{\boldsymbol{u}}^{\text{2D}}(\boldsymbol{r}_{//}, k_{\text{SPP}})}{(2L_{\text{SPP}})^2} \frac{1}{(k_z - k_{\text{SPP}})^2 + (1/2L_{\text{SPP}})^2}$$
(2.9)

On peut donc établir la constante de propagation $k_{\text{SPP}} = k'_{\text{SPP}} + ik''_{\text{SPP}}$ par un ajustement lorentzien de la LDOS.

Le tableau 2.2 compare les résultats obtenus par cette méthode (cf. fig. 2.7) avec ceux tirés de la relation de dispersion (cf. eq. 2.1). Ils diffèrent de moins de 0,01 pour l'indice effectif (et 4% pour la partie imaginaire) avec celle obtenue par résolution de l'équation de dispersion.

L'obtention de la partie réelle et imaginaire de l'indice effectif d'après les variations de la 2D-LDOS de la figure 2.5 permet de reconstituer la relation de dispersion pour différents rayons du nanofil (cf. fig. 2.8). Cette méthode est bien sûr applicable pour des géométries plus complexes comme nous le verrons plus loin.

Le mode HE_{11} n'a pas de rayon de coupure, son indice effectif tend vers $\sqrt{\varepsilon_1}$ pour des petits rayons. Ce phénomène traduit un mode dont l'onde est très peu confinée à la surface du guide[69].


FIGURE 2.7 – Profil Lorentzien de la 2D-LDOS pour une polarisation radiale à une distance d = 42 nm de la surface d'un nanofil d'or de rayon $\mathbf{R} = 10$ nm plongé dans un milieu d'indice 1, 5.

méthode	LDOS	Newton-Raphson
$\operatorname{Re}\left(k_{z}/k_{0}\right)$	5,138	5,127
$\mathrm{Im}\left(k_z/k_0\right)$	0,216	0,210

TABLE 2.2 – Comparaison de l'indice effectif pour un nanofil d'or de rayon R = 10 nmplongé dans un milieu d'indice $n_1 = 1, 5$. La longueur d'onde d'étude est de $\lambda = 800 \text{ nm}$.



FIGURE 2.8 – Indices des modes plasmons d'un cylindre d'or de différents rayons plongé dans le vide à $\lambda = 800 nm$.

L'avantage du formalisme utilisant la fonction de Green est de généraliser la notion de modes à tous les canaux de relaxation (modes guidés, à fuite, pertes Joules...) et ainsi de pouvoir identifier les différents canaux de relaxation d'un dipôle émetteur en présence d'un guide plasmonique. Ils sont détaillés dans les paragraphes suivants.

2.3 Canaux de relaxation

2.3.1 De la 2D à la 3D-LDOS

Afin de déterminer comment un émetteur dipolaire 3D se couple à un guide plasmonique infini de forme et de constitution arbitraire, nous étudions la densité locale d'états photoniques. En effet, le taux de couplage d'un émetteur quantique à un continuum de modes est donné par la règle d'or de Fermi [10] :

$$\Gamma(\mathbf{r}) = \frac{2\pi\omega}{\hbar\varepsilon_0} |d|^2 \rho_{\boldsymbol{u}}(\mathbf{r}, \omega_0)$$
(2.10)

où $\rho_{\boldsymbol{u}}(\boldsymbol{r},\omega_0)$ est la densité photonique locale partielle d'un émetteur située à \boldsymbol{r} et orienté selon \boldsymbol{u} , pour une pulsation d'emission ω_0 , $\boldsymbol{p} = p\boldsymbol{u}$ désigne le moment dipolaire.



FIGURE 2.9 – Dipole électrique p à proximité d'un nanofil métallique de rayon R.

Pour une meilleure compréhension des phénomènes, nous comparerons le taux d'émission d'un dipôle en présence d'un guide par rapport à son émission dans le vide. Cette dernière est donnée par $\rho_{\boldsymbol{u}}^0(\omega_0) = \omega_0^2/6\pi^2 c^3$. Aussi, la valeur normalisée du taux de couplage est donnée par [10] :

$$\frac{\Gamma(\boldsymbol{r})}{\Gamma_0} = \frac{\rho_{\boldsymbol{u}}(\boldsymbol{r},\omega_0)}{\rho_{\boldsymbol{u}}^0(\omega_0)}$$
(2.11)

où la densité d'état $\rho_{\boldsymbol{u}}(\omega_0)$ est donnée par

$$\rho_{\boldsymbol{u}}(\omega) = -\frac{k_0^2}{\pi\omega} \operatorname{Im} \left[\boldsymbol{u}.\mathbf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}).\boldsymbol{u} \right]$$
(2.12)

Pour une structure infiniment longue, le tenseur de Green 3D $\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r})$ peut être obtenue à partir de son homologue 2D grâce à une transformée de Fourier inverse [78]

$$\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dk_z \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\mathbf{r}_{//}, \mathbf{r}_{//}', k_z) e^{ik_z(z-z')}$$
(2.13)

On obtient ensuite la densité d'état à partir de l'équation 2.12

Université de Bourgogne

$$\rho_{\boldsymbol{u}}(\boldsymbol{r}) = -\frac{k_0^2}{2\pi^2\omega} \int_{-\infty}^{\infty} dk_z \operatorname{Im} \left[\boldsymbol{u}.\mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//},\boldsymbol{r}_{//},k_z).\boldsymbol{u} \right]$$
(2.14)

L'équation précédente (2.14) permet évidemment de retrouver la 3D-LDOS d'un milieu homogène d'indice n_1 . En effet,

$$-\frac{k_0^2}{\pi\omega} \operatorname{Im} \left[\boldsymbol{u} \cdot \mathbf{G}_{hom}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}, k_z) \cdot \boldsymbol{u} \right] = \frac{\omega}{6\pi c^2}$$
(2.15)

En remplaçant, la valeur obtenue dans l'équation 2.14, en limitant l'intégration au domaine des ondes radiatives définies par $k_z < n_1 k_0$, il vient :

$$\rho_{\boldsymbol{u},hom}(\boldsymbol{r}) = -\frac{k_0^2}{2\pi^2\omega} \int_{-n_1k_0}^{n_1k_0} dk_z \frac{n_1\omega}{6\pi c^2} = n_1 \frac{\omega^2}{6\pi^2 c^3}$$
(2.16)

L'équation 2.14 joue donc un rôle crucial dans ce chapitre puisqu'elle permet d'obtenir des informations sur le taux de couplage d'un émetteur ponctuel à proximité d'un guide infini. Si cette configuration est spatialement tridimensionnelle, l'invariance par translation du guide permet de restreindre le calcul numérique dans le plan transverse du guide.

2.3.2 Taux de couplage d'un émetteur

L'émission du dipole peut se répartir dans différents canaux (fig. 2.10) : une partie de l'énergie est rayonnée en champ lointain, cette portion correspondant au rayonnement est appelée Γ_{Ray} . Le reste est absorbée par le métal, cette partie non radiative est nommée Γ_{NRad} dans laquelle on peut distinguer

- une partie absorbée au cours de la réflexion sur le métal, notée Γ_{abs} ;
- une partie associée à la diffusion d'électrons notée Γ_{diff} ;
- et enfin une partie dissipée par effet Joule lors de la propagation du plasmon, notée $\Gamma_{\rm SPP}.$

On distingue ainsi l'énergie rayonnée de la contribution radiative (noté Γ_{Rad}). Cette dernière correspond aux photons directement émis par la nanosource. La différence entre les deux termes correspond à l'absorption (Γ_{abs}) i.e. $\Gamma_{\text{Rad}} = \Gamma_{abs} + \Gamma_{\text{Ray}}$.

En jouant sur les bornes d'intégration de l'intégrale de l'équation 2.14, il est possible d'isoler différentes contributions de la LDOS et donc calculer les différents taux de relaxation d'un émetteur dipolaire. La figure fig. 2.11 représente la variation de la 2D-LDOS en présence d'un guide plasmonique. Les modification de la 2D-LDOS en fonction du vecteur d'onde montrent trois comportements distincts dont on peut extraire les principales contributions [81, 82, 80] :

- les ondes propagatives de vecteurs d'onde inférieurs à n_1k_0 contribuent à la partie radiative du taux d'émission. La contribution Γ_{abs} est négligeable et sera discutée plus loin;
- l'aire du pic lorentzien centré sur n_{SPP} permet de connaître la proportion d'énergie envoyée dans le mode plasmon (Γ_{SPP});
- enfin, le reste de l'aire sous la courbe correspond l'énergie perdue par diffusion électronique dans le métal (aux grands k_z).

Il faut noter que la création de paires électrons-trous n'est pas prise en compte dans cette description nécessite un modèle non local de la constante diélectrique [81].



FIGURE 2.10 – Visualisation des différents canaux de relaxation .



FIGURE 2.11 – Profil de la P-LDOS $\Delta \rho_r^{2D}$ pour un émetteur situé à 20 nm d'un nanofil d'or de rayon R = 40 nm et identification sommaire des différents canaux de relaxation à $\lambda = 800$ nm.

2.3.3 Taux radiatif

La région des ondes de vecteurs d'onde vérifiant $|k_z| < n_1 k_0$ correspond aux ondes propagatives dans un milieu d'indice n_1 . Le taux radiatif doit être obtenu en intégrant le vecteur de Poynting sur une surface fermée à grande distance de l'émetteur. Ce calcul direct pose des problèmes numériques puisqu'il faudrait alors discrétiser en volume le guide pour déterminer le champ à grande distance du système étudié. Nous avons donc estimé le taux radiatif en intégrant la 2D-LDOS selon k_z avec $|k_z| < n_1 k_0$. Comme une partie des ondes propagatives subit une absorption lors de la réflexion sur le guide (cf. fig 2.10), la LDOS est évaluée avec une partie imaginaire nulle de la permittivité du métal (Im $\varepsilon_2 = 0$) [80].

$$\rho_{rad,\boldsymbol{u}}(\boldsymbol{r}) = -\frac{k_0^2}{2\pi^2\omega} \int_{-n_1k_0}^{n_1k_0} dk_z \mathrm{I}m\boldsymbol{u}.\mathbf{G}^{\mathrm{2D}}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r},k_z) \big|_{\mathrm{Im}\ \varepsilon_2=0}.\boldsymbol{u}$$
(2.17)

De plus, grâce à la parité du tenseur \mathbf{G}^{2D} , le taux radiatif divisé par le taux radiatif dans un milieu homogène est donné par

$$\frac{\Gamma_{rad,\boldsymbol{u}}}{n_1\Gamma_0} = -\frac{6}{n_1k_0} \int_0^{n_1k_0} dk_z \mathrm{I}m\boldsymbol{u}.\mathbf{G}^{\mathrm{2D}}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r},k_z).\boldsymbol{u} = 1 - \frac{6}{n_1k_0} \int_0^{n_1k_0} dk_z \mathrm{I}m\boldsymbol{u}.\boldsymbol{\Delta}\mathrm{G}^{\mathrm{2D}}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r},k_z).\boldsymbol{u}$$
(2.18)

avec $\Gamma_0 = \omega^2/6\pi^2 c^3$ et $\mathbf{G}^{2\mathrm{D}} = \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{ref} + \Delta \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}$.

Les variations du taux radiatif pour un dipôle situé à une distance d d'un nanofil d'or sont représentées fig. 2.12.



FIGURE 2.12 – Radiative (a) taux radiatif d'émission d'un dipôle situé à une distance d d'un nanofil d'or pour trois orientations (a. radial, b. orthoradial, c. longitudinal). Le rayon du fil est de R = 10 nm et la longueur d'onde d'émission du dipôle est de $\lambda = 800 nm$.

Les variations du taux radiatif peuvent s'expliquer en considérant le dipôle image dans le nanofil [83] et représenté en bas de la figure. Pour des orientations orthoradiale et longitudinale, le dipole induit compense le dipole principal et le rayonnement à grande distance est faible, le taux radiatif s'effondre. Pour l'orientation radiale, le dipole induit s'ajoute au dipole principal et le taux radiatif augmente fortement lorsque celui-ci est proche du guide.

2.3.4 Taux non radiatif

Les différentes contributions

Le taux non-radiatif est obtenu en intégrant la 2D-LDOS avec $|k_z| > n_1 k_0$ auquel est rajouté la contribution due à l'absorption des ondes propagatives. Cette dernière étant d'amplitude négligeable devant les autres contributions (cf Annexe B.2), nous restreindrons le taux non-radiatif au terme suivant :

$$\rho_{\mathrm{N}rad,\boldsymbol{u}}(\boldsymbol{r}) \approx -\frac{6}{n_1 k_0} \int_{n_1 k_0}^{\infty} dk_z \mathrm{I}m \boldsymbol{u}.\mathbf{G}^{\mathrm{2D}}(\boldsymbol{r},k_z).\boldsymbol{u}$$
(2.19)

La LDOS est représentée en échelle logarithmique sur la figure 2.13, pour un dipole orienté radialement au guide. On observe deux contributions majeures au taux de relaxation non-radiatif :

- l'excitation d'un plasmon ($\Gamma_{\rm SPP}$) formant un pic discuté plus loin;
- des ondes engendrants des pertes par diffusion d'électrons pour les grands vecteurs d'onde (« lossy surface waves ») [82, 81, 80].

Ces dernières apparaissent lorsque l'émetteur est proche du guide comme en témoigne la fig. 2.13. On retrouve le même comportement qu'un dipole devant un film plat métallique.



FIGURE 2.13 – Représentation (échelle log-log) des variations de la 2D-LDOS pour un guide d'or de rayon R = 10 nm. La longueur d'onde d'émission est $\lambda = 800$ nm, $\varepsilon_{Au} = -24 + 1,52i$, le milieu extérieur a pour permittivité $\varepsilon_1 = 2,25$.

Par ailleurs, on remarque une décroissance rapide de la 2D-LDOS avec la distance, ceci s'explique par le fait que les interactions entre le dipôle et le guide diminue quasiexponentiellement comme le profil modal.

Evolution du taux non-radiatif

Après intégration de la 2D-LDOS pour $k_z > n_1 k_0$, on obtient le taux non-radiatif qui est représenté Fig. 2.14. La contribution Γ_{SPP} est aussi indiquée et sera discutée au chapitre suivant.



FIGURE 2.14 – Taux non-radiatif d'émission d'un dipôle situé à une distance d d'un nanofil d'or pour trois orientations (a. radial, b. orthoradial, c. longitudinal). Le rayon du fil est de R = 10 nm et la longueur d'onde d'émission du dipôle est de $\lambda = 800 nm$.

Les orientations radiales et longitudinales donnent un taux non-radiatif plus important que pour une orientation orthoradiale car le mode plasmon ne peut pas être excité pour cette orientation. Par ailleurs, pour ces deux orientations, le taux non-radiatif augmente fortement pour un dipole situé à proximité du guide car le couplage au plasmon et la diffusion des électrons dans le métal sont favorisés.

2.3.5 Taux plasmonique

Nous avons vu que la densité locale d'état 2D peut être assimilée à une lorentzienne au voisinage de la résonance plasmon (cf. eq. 2.9). En remplaçant son expression dans l'équation 2.14 exprimant la 3D-LDOS, on obtient la relation suivante [84] :

$$\Delta \rho_{\rm SPP}(\boldsymbol{r}) = \frac{\pi k_0^2}{4\omega k_z^0} \frac{1}{\mathcal{L}_{spp}} \Delta \rho^{\rm 2D}(\boldsymbol{r}_{//})$$
(2.20)

Ainsi le taux de couplage au plasmon s'écrit alors sous la forme suivante qui est une généralisation du facteur de Purcell à un guide plasmonique :

$$\frac{\Gamma_{\rm SPP}}{n_1\Gamma_0} = \frac{3\pi\lambda}{4\varepsilon_1^{3/2}k_{\rm SPP}} \frac{\Delta\rho_u^{\rm 2D}(\boldsymbol{r}_{||}, k_{spp})}{\mathcal{L}_{\rm SPP}}$$
(2.21)

Il est intéressant de remarquer que la 3D-LDOS ne dépend que de la 2D-LDOS à la résonance plasmon $\Delta \rho^{2D}(k_{\rm SPP})$ et de la longueur de propagation du plasmon L_{spp} . L'équation 2.21 donne alors une expression approchée du taux de couplage d'un émetteur 3D à un guide plasmonique 2D de section arbitraire. Elle contient à la fois la distribution modale transverse du champ du nanofil par le terme $\Delta \rho^{2D}$ et la propagation du plasmon selon l'axe du nanofil avec la distance de propagation L_{spp} . Nous discuterons le lien entre ce terme et le facteur de Purcell en détail au chapitre suivant.

Le taux d'émission d'un photon dans le mode plasmon contribue pour une grande part au taux non-radiatif (cf fig. 2.15.a). La décroissance du taux en fonction de la distance au guide est gouvernée par la chute du champ modal du guide lorsque l'on s'éloigne de celuici. Le champ extérieur au guide étant donné par une fonction de Bessel, la décroissance est



FIGURE 2.15 – Comparaison du taux non-radiatif d'émission d'un dipôle situé à une distance d d'un nanofil d'or plongé dans le vide au taux plasmonique. Le rayon du fil est de R = 10 nm et la longueur d'onde d'émission du dipôle est de $\lambda = 800 nm$.

très rapide (quasi-exponentielle). On remarquera cependant qu'à courte distance le taux plasmonique se distingue du taux non-radiatif correspondant à la diffusion d'électrons pour de grands vecteurs d'onde sur les impuretés du métal [82]. Ces phénomènes se font évidemment au détriment de la formation du plasmon et deviennent négligeables pour des distances supérieures à 5 nm comme celles étudiées ici (cf fig. 2.15.b).

À grande distance, l'écart entre le taux non-radiatif et le taux plasmonique s'explique par la présence du mode HE_{11} dont la contribution devient non-négligeable par rapport au mode plasmon (cf fig. 2.15.c). Cependant, l'émission n'est pratiquement pas couplée aux modes guidées ($\Gamma \sim 0, 01\Gamma_0$).

2.4 Efficacité de couplage (facteur β)

Grâce aux résultats précédents, il est possible de définir un paramètre clef caractérisant l'efficacité du couplage d'un émetteur à un guide. Ce paramètre est la fraction d'énergie émise par l'émetteur dans le mode plasmon, défini par :

$$\beta = \frac{\Gamma_{\rm SPP}}{\Gamma_{rad} + \Gamma_{\rm Nrad}} \tag{2.22}$$

Au vu des taux définis précédemment, à courte distance, la diffusion d'électron domine par rapport à l'émission dans le mode plasmon et le taux radiatif est alors négligeable. À grande distance, le taux plasmonique décroît fortement, la contribution radiative est alors prépondérante. Dans ces deux cas extrêmes le facteur β est déprécié.

Il en résulte que pour des distances entre l'émetteur et le nanofil de quelques dizaines de nm, le couplage vers le mode plasmon est prépondérant devant la diffusion d'électron et l'émission en champ lointain. On obtient alors un maximum dépassant 80% pour les orientations longitudinale et radiale comme indiqué sur la figure 2.16.



FIGURE 2.16 – Facteur β à proximité d'un nanofil d'or de rayon $\mathbf{R} = 10 \, nm$ en fonction de la distance émetteur-nanofil. La longueur d'onde d'émission est de $\lambda = 800 \, nm$.

2.5 Nanofil cristallin

Afin de diminuer les pertes de propagation du plasmon, plus importantes dans une structure en métal amorphe que dans une structure cristalline [85, 86, 87], nous nous sommes intéressés à des guides cristallins présentant une morphologie pentagonale [88, 89].



FIGURE 2.17 – Relation de dispersion d'un guide pentagonale et d'un guide cylindrique équivalent à $\lambda = 800$ nm.

La relation de dispersion du mode fondamental d'un pentagone suit les mêmes variations que celle d'un cylindre [88]. Pour les gros rayons, l'écart entre les deux indices effectifs est faible tandis que pour les petits rayons, un effet de pointe se fait sentir et l'indice effectif du pentagone augmente plus fortement, traduisant un fort confinement modal (cf. fig. 2.18).

Le taux plasmonique étant proportionnel à la LDOS pour le mode plasmon, le fort confinement du champ électrique par « effet de pointe » améliore Γ_{SPP} à courte distance (cf fig. 2.19). De plus, pour une structure cristalline, la partie imaginaire de la permittivité du métal est nettement diminuée [86]. On peut donc espérer une distance de propagation plus importante tout en maintenant le confinement et le couplage.



FIGURE 2.18 – Profil de $|\mathbf{E}|^2$ pour le champ modal d'un cylindre et d'un pentagone.



FIGURE 2.19 – Taux plasmonique et facteur β d'un émetteur orienté radialement à proximité d'un guide cylindrique (ligne pointillée) ou pentagonale (ligne continue) pour un rayon de R = 10 nm.

2.6 Influence d'un substrat

2.6.1 Apparition de modes à fuites

Nous considérons ici la configuration décrite figure 2.20. Le dipôle émetteur est placé entre le nanofil et un substrat. Cette configuration peut être obtenue par dépôt d'un film PMMA dopé avec des molécules fluorescentes sur lequel est déposé le nanofil.



FIGURE 2.20 – Position d'un dipôle entre le substrat et le guide cylindrique.

Pour discuter qualitativement le comportement du mode SPP dans cette configuration, nous avons tracé sur la figure 2.21 la relation de dispersion en fonction du rayon pour un nanofil dans l'air. Lorsque celui-ci n'est pas en contact avec le substrat, la relation est assez bien décrite par ce modèle [90].



 ${\rm FIGURE}$ 2.21 – Relation de dispersion d'un mode plasmon à 800 nm sur un nanofil d'or de rayon R dans le vide.

Pour des rayons inférieurs à 25 nm, l'indice effectif du mode est supérieure à 1,5 et le mode est lié. Par contre, aux grands rayons, l'indice du mode est compris entre 1 et

1,5 et le mode devient à fuite dans le substrat. Ces fuites peuvent d'ailleurs être mises à profit pour caractériser le mode guidé par microscopie des fuites radiatives [91, 88].

On choisit une distance entre le nanofil et le substrat de l'ordre du rayon pour que le mode plasmon présente une longueur de propagation suffisante. Un calcul exact (ici par la méthode des éléments finis) donne le profil modal. Sur la figure 2.22, on observe une modification radicale du plasmon lorsque la distance entre le nanofil et le substrat diminue. Si celle ci est de l'ordre au rayon, le champ est alors confiné dans l'espace situé entre le nanofil et le substrat. De plus, cela conduit ici à un confinement modal entre le nanofil et le substrat, utile pour coupler efficacement un émetteur placé dans cet interstice.



FIGURE 2.22 – Profil du champ électrique en unité arbitraire pour un nanofil d'or de rayon R = 40 nm à une distance g du substrat. L'indice du substrat est $\varepsilon_{\rm S} = 1, 5$, le milieu extérieur est le vide. La longueur d'onde d'étude est 800 nm.

Il est intéressant de noter que l'indice effectif est alors aussi un peu plus élevé à courte distance car le profil modal présente une contribution dans le substrat. Ceci réduit les pertes radiatives : à une distance de 15 nm du substrat, on obtient une longueur de propagation de $L_{SPP} = \lambda/4\pi n'' = 1220$ nm contre 960 nm si le guide est éloigné de 50 nm du substrat.

2.6.2 Identification des canaux de relaxation

Efficacité de collection

L'étude des taux de relaxation d'un émetteur situé entre le substrat et le nanofil est effectuée pour un rayon du nanofil de R = 40 nm situé à g = 40 nm d'un substrat.

Le formalisme étudié ici permet de distinguer les différentes contributions aux taux de relaxation d'un émetteur situé entre un support et un nanofil (cf. fig. 2.23) :

- on note Γ_{Ray} , la partie contribuant à l'émission radiative dans le milieu extérieur;
- une partie de l'émission d'un dipôle est couplée au mode plasmon, nous notons Γ_{SPP} cette contribution;
- une partie de l'énergie est dissipée dans le métal, soit par absorption lors de la réflexion (notée Γ_{abs}), soit par diffusion d'électrons (notée Γ_{diff}), soit encore lors de la propagation du plasmon (notée Γ_{SPP}^{NR}).

La grandeur pertinente dans ce type de dispositif est alors la partie mesurable de l'énergie plasmonique issue de la nanosource qui fuit dans le substrat (noté $\Gamma_{\text{SPP}}^{\text{Rad}}$) par rapport à l'énergie totale émise. On définit alors le facteur β par :

$$\beta = \frac{\Gamma_{\text{SPP}}^{\text{Rad}}}{\Gamma_{tot}} \tag{2.23}$$

où Γ_{tot} est la somme de tous les canaux décrits ci-dessus.



FIGURE 2.23 – La représentation des différents canaux de relaxation envisagés pour un émetteur situé entre un substrat et un nanofil

Canaux plasmoniques

Deux types de pertes peuvent coexister pour le mode SPP. D'une part, l'énergie est dissipée par effet Joule dans le métal et d'autre part l'énergie peut être évacuée dans le substrat. En effectuant l'étude avec une partie imaginaire nulle de la permittivité métallique, l'absorption dans le métal est annulée. La 2D-LDOS présente tout de même un profil lorentzien au voisinage du mode plasmon traduisant ainsi une énergie perdue dans le substrat lors de la propagation. À titre d'exemple, un nanofil d'or de rayon R = 40 nm plongé dans un milieu d'indice $n_1 = 1$, à 40 nm d'un substrat d'indice $n_s = 1, 5$ présente à 800 nm un indice effectif de $n_{\rm SPP} = 1,412$. Grâce au profil lorentzien, la largeur à mi-hauteur permet d'évaluer la longueur de propagation en présence des deux types de pertes : $L_{\rm SPP} = 1,70 \ \mu$ m. Pour estimer les fuites radiatives, on annule la partie imaginaire de la permittivité métallique (Im $\varepsilon_2 = 0$) ce qui conduit à une longueur de propagation de $L_{\rm SPP}|_{\rm Im} = 3,42 \ \mu$ m.

La longueur de propagation peut donc se décomposer en deux contributions correspondantes aux pertes radiatives dans le substrat ($\Gamma_{\text{SPP}}^{\text{Rad}}$) et aux pertes Joule lors de la propagation du plasmon ($\Gamma_{\text{SPP}}^{\text{NRad}}$).

Le taux radiatif est obtenue en annulant les pertes métalliques :

$$\Gamma_{\rm SPP}^{\rm Rad} = \frac{1}{L_{\rm SPP}^{\rm Rad}} = \frac{1}{L_{\rm SPP}}\Big|_{{\rm Im}\varepsilon=0}$$
(2.24)

Le taux dû aux pertes Joules est alors obtenue par différence entre le taux de perte total et celui dû aux pertes radiatives :

$$\Gamma_{\rm SPP}^{\rm NRad} = \frac{1}{L_{\rm SPP}^{\rm Nrad}} = \Gamma_{\rm SPP} - \Gamma_{\rm SPP}^{\rm NRad}$$
(2.25)



FIGURE 2.24 – 2D-LDOS pour un nanofil d'or de rayon $\mathbf{R} = 40$ nm plongé dans un milieu d'indice $n_1 = 1$ à 40 nm d'un substrat d'indice $n_s = 1, 5$.

Pour un cylindre d'or de 40 nm de rayon, les longueurs de propagations sont répertoriées dans le tableau ci-dessous.

	$L_{\rm SPP}$	L_{SPP}^{Rad}	$\mathcal{L}_{\mathrm{SPP}}^{\mathrm{N}rad}$
(μm)	1,70	3,42	3,38

L'équation 2.21 permet d'obtenir la contribution plasmon grâce au maximum de la 2D-LDOS évaluée à l'indice plasmon et est rappelée ci-dessous.

$$\frac{\Gamma_{\rm SPP}}{n_1\Gamma_0} = \frac{3\pi\lambda}{4\varepsilon_1^{3/2}k_{\rm SPP}} \frac{\Delta\rho_{\boldsymbol{u}}^{\rm 2D}(\boldsymbol{r}_{||}, k_{spp})}{L_{\rm SPP}}$$
(2.26)

Grâce à l'évaluation des longueurs de propagation avec et sans perte métallique, il est possible d'attribuer un pourcentage de l'énergie plasmon évacuée par le substrat (noté $\Gamma_{\text{SPP}}^{\text{Rad}}$) de celle se propageant puis s'éteignant dans le métal (noté $\Gamma_{\text{SPP}}^{\text{NR}}$).

$$\mathscr{N}_{\text{Rad}} = \frac{\text{L}_{\text{SPP}}}{\text{L}_{\text{SPP}}^{\text{Rad}}} \quad \text{et} \quad \mathscr{N}_{\text{NRad}} = \frac{\text{L}_{\text{SPP}}}{\text{L}_{\text{SPP}}^{\text{NRad}}}$$
(2.27)

Canaux radiatif et de rayonnement

Nous définissons comme partie radiative, la contribution de la 2D-LDOS comprise entre 0 et n_1k_0 lorsque la partie imaginaire de la permittivité métallique est nulle.

$$\frac{\Gamma_{\text{Rad}}}{n_1 \Gamma_0} = 1 + \frac{3\pi}{\varepsilon_1^{3/2} k_0} \int_0^{n_1 k_0} \frac{\Delta \rho^{2\text{D}} \big|_{\text{Im}\varepsilon = 0}}{k_z} dk_z$$
(2.28)

Cette contribution peut se décomposer en une partie rayonnée dans le milieu extérieur et le substrat (Γ_{ray}) et une partie plasmonique ($\Gamma_{\text{SPP}}^{\text{Rad}}$).

Université de Bourgogne

La partie rayonnée dans le milieu extérieur peut être obtenue en retranchant la contribution plasmonique et les pertes lors de la réflexion Γ_{abs} .

$$\Gamma_{ray} = \Gamma_{rad} - \Gamma_{SPP} - \Gamma_{abs} \tag{2.29}$$



FIGURE 2.25 – Taux radiatif et de rayonnement. Le nanofil est à 40 nm du substrat, son rayon est de R = 40 nm. Le dipôle est est situé entre le nanofil et le substrat et émet à la longueur d'onde $\lambda = 800 nm$.

La figure 2.25 montre la contribution radiative (avec la partie plasmon) et de rayonnement. On observe une contribution rayonnée quasi-stable hormis à proximité du guide situé à 40 nm du substrat. En effet, à cette distance, les pertes par absorption deviennent importantes et diminuent le taux rayonné.

Canaux non-radiatifs

Parmi les canaux non-radiatifs, comme illustré fig. 2.23, il est possible de distinguer

- la dissipation dans le métal lors de la propagation du plasmon, noté $\Gamma_{\text{SPP}}^{\text{Nrad}}$ (calculée par eq. 2.25);
- les pertes par absorption dans le métal lors de réflexion, notées Γ_{abs} (cf. eq. 2.30);
- la diffusion d'électrons sur le réseau métallique, notée Γ_{diff} (cf. eq. 2.31).

Le domaine des ondes propagatives dans le milieu extérieur est définie par $0 < k_z < k_0$. Les pertes lors de la réflexion sont alors obtenues en effectuant la différence des intégrales de la 2D-LDOS avec et sans partie imaginaire. L'annulation de la permittivité du métal permet d'évaluer, par différence, la partie absorbée dans le métal (cf. figure 2.26) :

$$\Gamma_{abs} = \int_{0}^{k_0} \frac{3\pi}{\varepsilon_1^{3/2}} \frac{\Delta \rho^{2D}}{k_z} dk_z - \int_{0}^{k_0} \frac{3\pi}{\varepsilon_1^{3/2}} \frac{\Delta \rho^{2D}}{k_z} \Big|_{Im\varepsilon=0} dk_z$$
(2.30)

La diffusion d'électrons intervient pour les grands vecteurs d'onde. Les pertes par diffusion d'électrons s'obtiennent par différence en partant du taux total. Ce dernier comprend la partie absorbée par réflexion métallique, la partie rayonnée vers l'extérieur et dans le



FIGURE 2.26 – Variation de la 2D-LDOS pour un guide plasmonique de rayon R = 40 nm à une distance d = 40 nm d'un substrat de permittivité $\varepsilon_1 = 2, 25$. Le milieu extérieur est le vide. La longueur d'onde d'étude est $\lambda = 800$ nm, $\varepsilon_{Au} = -24 + 1, 52i$.

substrat ainsi que la partie plasmon. Tous ces canaux ayant été identifiés, on en déduit que

$$\Gamma_{diff} = \Gamma_{tot} - \Gamma_{Rad} - \Gamma_{abs} \tag{2.31}$$

Il est important de souligner que la partie plasmon est intégralement comprise dans Γ_{Rad} bien que les pertes métalliques soient annulées. En effet, le taux de couplage dans le mode plasmon ne dépend pas des pertes. Ce point sera discuté en détail au chapitre suivant.

La figure 2.27 représente les différentes contributions aux taux non-radiatifs. Le plus grand contributeur au taux non-radiatif est le plasmon tant que la distance au guide est supérieure à 10 nm ($d \sim 30nm$). Puis, à proximité du guide l'augmentation des pertes par diffusion d'électrons augmente grandement favorisant ainsi le taux non-radiatif. On peut remarquer que la contribution Γ_{abs} est 10 fois plus petite que les autres mais intervient dans la diminution du taux radiatif (cf. 2.6.2).

2.6.3 Efficacité de collection

La grandeur expérimentalement intéressante pour étudier le plasmon est la contribution des fuites dans le substrat $\Gamma_{\text{SPP}}^{\text{Rad}}$. Cette mesure effectuée par microscopie des fuites radiatives peut être assimilée à une efficacité de collection. Nous pouvons alors comparer ce taux au taux d'émission total Γ_{tot} pour définir le facteur β correspondant à cette configuration :

$$\beta_{rad} = \frac{\Gamma_{\rm SPP}^{\rm Rad}}{\Gamma_{\rm tot}} \tag{2.32}$$

Afin de comprendre l'évolution de β en fonction de la hauteur d entre l'émetteur et le substrat (cf. fig. 2.28.a), un bilan des différents taux calculés ci-dessus est représenté fig. 2.28.b.



FIGURE 2.27 – Contribution au taux non radiatif. Le rayon du fil est de R = 40 nm et la longueur d'onde d'émission du dipôle est de $\lambda = 800 nm$.



FIGURE 2.28 – Evolution des différents taux pour un émetteur à $\lambda = 800$ nm situé entre un substrat et un guide cylindrique plasmonique de rayon R = 40 nm.

Le facteur β est quasiment constant jusqu'à 25 nm. En effet, pour ces distances, les pertes par diffusion sont quasi-inexistante et la décroissance quasi-exponentielle du champ modal entre le guide et le substrat est accompagnée d'une variation équivalente du taux radiatif.

La chute brutale de β lorsque *d* augmente au delà de 30 nm, c'est à dire lorsque l'émetteur est proche du guide s'explique par l'augmentation des pertes par diffusion d'électrons dans le métal (le dipôle émetteur est alors à moins de 10 nm du guide).

Afin de favoriser le couplage entre un émetteur et un guide cylindrique en présence d'un substrat, il est important de positionner l'émetteur à proximité du substrat. Ce résultat peut sembler contre-intuitif puisque l'émission directe dans le substrat est favorisée. Malgré cela, le couplage au mode plasmon est plus important et on compte jusqu'à 40% de collection dans ce mode (cf. fig. 2.28).

2.7 Conclusion

Grâce au formalisme de Green, nous avons pu détailler les différents canaux de relaxation et leur influence sur l'émission de fluorescence d'un nano-émetteur. Nous avons fait apparaître 3 domaines de la LDOS correspondants à 3 canaux principaux :

- une émission radiative $(|k_z| < n_1 k_0);$
- une émission dans le mode plasmon de la structure $(k_z \sim k_{\rm SPP})$
- une diffusion des électrons dans le métal $(k_z >> k_{\text{SPP}})$

L'importance relative de ces canaux dépendent de la distance de l'émetteur à la structure guidante. Pour une émission dans le mode plasmon, il est donc nécessaire de se placer à proximité de la structure pour favoriser le taux plasmonique par rapport au taux radiatif, tout en étant suffisamment éloigné pour éviter la diffusion d'électrons dans le métal. Ces considérations sont importantes pour effectuer un couplage expérimental entre une nanosource et un guide plasmonique. Des études expérimentales récentes ont d'ailleurs réussi à montrer l'accélération de l'émission d'un nano-cristaux de diamant couplé à un nanofil d'argent. (cf. fig. 2.29) [92].



FIGURE 2.29 - a) Evolution du temps de relaxation d'une nanosource à proximité d'une nanostructure plasmonique (b) [92].

L'optimisation de ce couplage est enjeu majeur pour la détection et la manipulation de molécules fluorescentes et deux pistes principales sont discutés dans le chapitre suivant.

Chapitre 3

Effet des pertes et couplage en bordure de bande interdite

Introduction

Afin de favoriser l'interaction lumière-matière, il a été suggéré d'utiliser des structures possédant des modes dit « lents » dont la vitesse de groupe est très faible, notamment dans les cristaux photoniques, en bordure de bande interdite [93, 94, 95]. Ainsi, en augmentant le temps d'interaction entre un émetteur et le polariton, il est possible de modifier et contrôler les propriétés d'émission. Pour le cas d'un laser, ceci peut conduire à interdire l'émission spontanée au profit de l'émission stimulée, permettant de réaliser des lasers à bas seuil voire sans seuil [45, 96]. Dans le cas d'un SPP, le mode lent (ayant un comportement quasistatique, cf. chap.2) présente de fortes pertes si bien que leur étude complète est indispensable. Nous montrerons dans ce chapitre que les modes quasi-statiques sont associés à des pertes si importantes que les plasmons ne se propagent quasiment pas. En revanche, nous montrerons que les modes de petites structures (inférieures à quelques dizaines de nanomètres) ont un comportement analogue et permettent un bon couplage avec un émetteur quantique.

3.1 Comportement quasi-statique

3.1.1 Limite quasi-statique

La figure 3.1 reprend la relation de dispersion d'un modeTM₀₁ d'un nanofil métallique, calculée pour un système sans perte. En bordure de bande interdite ($\omega \sim 3, 7.10^{15}$ rad.s⁻¹ soit $\lambda = 525$ nm), la vitesse de groupe $v_g = d\omega/dk_z$ s'annule, définissant un mode « lent » [97]. De plus, la distance caractéristique de l'extension transverse du mode est donnée par $1/\kappa$ où $\kappa = \sqrt{k_z^2 - \varepsilon_1 k_0^2}$. Ainsi, dans la limite quasi-statique k_z augmente fortement et v_g s'annule, les modes sont à la fois lents et fortement confinés expliquant la forte interaction lumière-matière.

L'asymptote observée dans la figure 3.1 est dictée par le comportement quasi-statique et vérifie $\varepsilon_2(\omega) + \varepsilon_1 = 0$ pour un SPP à l'interface des milieux de permittivité ε_1 et ε_2 . Cette condition est vérifiée à $\lambda = 525$ nm dans le cas d'une interface or/verre. Pour



FIGURE 3.1 – Relation de dispersion d'un nanofil d'or de rayon 100 nm en l'absence de pertes. L'asymptote horizontale pour $\omega = 3,7 \times 10^{15} \text{ rad.s}^{-1}$ correspond à la limite du régime quasistatique $\varepsilon_2(\omega) + \varepsilon_1 = 0$.

cette longueur d'onde, les pertes dans le métal sont importantes du fait des transitions interbandes ce qui se traduit par une partie imaginaire de la permittivité de l'or du même ordre de grandeur que la partie réelle [67] : $\varepsilon_{Au}(525 \text{ nm}) = -4, 26 + 2, 45i$. Nous avons représenté sur la figure 3.2 la relation de dispersion du mode TM₀₁ en fonction du rayon du nanofil d'or, en tenant compte des pertes.



FIGURE 3.2 – (a) Relation de dispersion d'un nanofil d'or à $\lambda = 525nm$ en fonction du rayon normalisé. Le nanofil d'or est plongé dans un milieu homogène d'indice 1,5. (b) Rapport de longueur de propagation du plasmon L_{SPP} à la longueur d'onde plasmon λ_{SPP} .

La présence de fortes pertes dans le métal pour cette longueur d'onde conduit à une longueur de propagation très faible ($L_{SPP} = 100$ nm pour R = 80 nm). On remarque que la distance de propagation (L_{SPP}) est toujours inférieure à la longueur d'onde plasmon (λ_{SPP}), même pour des rayons de guide important (cf. fig.3.2.a). Nous pouvons donc en conclure que le plasmon ne se propage pas puisqu'il n'y a même pas une oscillation spatiale avant qu'il ne soit atténué.

3.1.2 Modes simili-QS

En régime quasi-statique (vers $\lambda \sim 525$ nm pour l'or), le fort confinement modal est obtenu au prix de fortes pertes. Afin de trouver un compromis satisfaisant entre confinement et pertes, nous considérons ici des modes au comportement similaire mais dans le régime retardé ($\lambda \sim 800$ nm - proche IR ici). En effet, pour des rayons de guide très faibles, l'indice effectif du plasmon augmente fortement (cf. fig. 3.3.a) même si la longueur d'onde est éloignée du régime quasistatique. Pour de telles structures, on obtient donc des modes fortement confinés. Contrairement au cas quasi-statique décrit plus haut, la longueur de propagation du plasmon est toujours supérieure à la longueur d'onde : le plasmon peut se propager sur des distances de quelques μ m tout en présentant un confinement important (cf. fig.3.3.b).



FIGURE 3.3 – (a) Relation de dispersion d'un nanofil d'or à $\lambda = 800 nm$ en fonction du rayon normalisé. Le nanofil d'or est plongé dans un milieu homogène d'indice 1,5. (b) Rapport de longueur de propagation du plasmon L_{SPP} à la longueur d'onde plasmon λ_{SPP} .

Ces modes semblent ainsi plus intéressants puisque le plasmon est réellement propagatif avec une vitesse de phase suffisamment lente et un confinement élevé pour favoriser les interactions lumière-matière.

3.2 Facteur de Purcell plasmonique

3.2.1 Facteur de Purcell sans perte

Dans un premier temps, nous cherchons à caractériser l'influence des pertes sur le couplage entre un émetteur et un guide plasmonique. Le taux de couplage dans un guide sans perte est analytique et a pour expression [68, 98]:

$$\frac{\Gamma_{\rm SPP}}{\Gamma_0} = \frac{3\pi c\varepsilon_0 \mathbf{E}_{\boldsymbol{u}}(d) [\mathbf{E}_{\boldsymbol{u}}(d)]^*}{k_0^2 \int_{\mathbf{A}_{\infty}} (\mathbf{E} \times \mathbf{H}^*) \cdot \boldsymbol{z}.d\mathbf{A}}$$
(3.1)

où $E_{\boldsymbol{u}}(d)$ est le champ électrique modal à la position d du dipôle et selon son orientation \boldsymbol{u} . * désigne le conjugué et A_{∞} une section infinie du plan normal au guide.

Pour un guide circulaire, les expressions du champ électrique et magnétique sont connues [69] (voir aussi table 2.1) et la figure 3.4 représente le profil modal aux longueurs d'onde 800 nm et 525 nm où l'on observe le fort confinement du champ à l'interface métal/dielectrique.



FIGURE 3.4 – Distribution du champ électrique pour un cylindre d'or de rayon R = 10 nm, plongé dans un diélectrique de permittivité $\varepsilon_1 = 2,25$. Les modes sont normés (cf. chap. 4).

Il est possible d'obtenir une expression analytique exacte du taux de couplage dans le mode plasmon (cf. annexe B.1). Si on néglige le champ dans le métal dans l'intégrale apparaissant au dénominateur de l'eq. 3.1, on obtient la forme simple suivante (avec une erreur relative de 5%) :

$$\frac{\Gamma_{\rm SPP}}{n_1 \Gamma_0} \approx \frac{3}{\varepsilon_1^{3/2}} \frac{1}{n_{eff}(\kappa_1 R)^2} \frac{E_u^2(d)}{K_0(\kappa_1 R) K_2(\kappa_1 R) - K_1(\kappa_1 R)^2},\tag{3.2}$$

où $k_{1\perp} = \sqrt{\varepsilon_1 k_0^2 - k_{\perp}^2} = i\kappa_1$, n_{eff} désigne l'indice effectif du plasmon et K_i la fonction de Bessel modifiée. La valeur de $k_{1\perp}$ est imaginaire pure puisque $k_{//} < k_1$. Cela signifie que l'onde plasmonique est évanescente dans le milieu environnant. E_u est la composante du champ électrique de mode plasmon parallèle à l'orientation **u** du dipôle émetteur.



FIGURE 3.5 – Taux de couplage plasmonique d'un émetteur disposé radialement (a) ou longitudinalement (b) vers le mode plasmon à 800 nm en fonction de la distance à un nanofil d'or de rayon R = 10 nm.

En figure 3.5, on remarque que les taux radial et longitudinal calculés avec et sans perte sont identiques (un dipôle orthoradial ne se couplant pas dans le mode plasmon, cette orientation n'est pas utilisée). Il est donc légitime de s'interroger sur l'influence des pertes sur le couplage d'un émetteur à un guide plasmonique.

3.2.2 Effet des pertes

Nous avions établi au chapitre précédent que l'expression exacte du taux de couplage d'un émetteur avec un guide à perte est donnée par

$$\frac{\Gamma_{\rm SPP}}{n_1\Gamma_0} = \frac{3\pi\lambda}{4n_1^3k_{\rm SPP}} \frac{\Delta\rho_u(\boldsymbol{r}_{//}, k_{\rm SPP})}{L_{\rm SPP}}.$$
(3.3)

Il est possible d'évaluer l'influence des pertes Joule dans le métal en modifiant la partie imaginaire de sa permittivité. Comme prévu, le profil Lorentzien s'élargit avec l'augmentation des pertes traduisant une diminution de la longueur de propagation L_{SPP} (cf. fig. 3.6.a.). En revanche, l'indice effectif n_{SPP} ne dépend que très peu des pertes. Toutefois, pour des pertes importantes, la 2D-LDOS ne suit plus un profil Lorentzien et le concept de mode devient caduque (voir aussi le paragraphe 2.1 du chapitre 2).



FIGURE 3.6 – a) 2D-LDOS en fonction de l'indice effectif k_z/k_0 pour différentes valeur de l'absorption métallique Im(ε_2). Le rayon du guide vaut R=10 nm. La 2D-LDOS suit un profil Lorentzien centré sur l'indice effectif du mode plasmon $n_{\rm SPP}$. La largeur à mihauteur est inversement proportionnelle à la longueur de propagation L_{SPP}. b) Evolution du rapport $\Delta \rho^{\rm 2D}/L_{\rm SPP}$ en fonction de Im(ε_2).

Le nombre de modes est donné par l'aire sous la courbe de la 2D-LDOS, cette valeur est proportionnelle au rapport $\Delta \rho^{2D}/L_{SPP}$ pour un profil Lorentzien. Il est alors important de vérifier que ce rapport est pratiquement indépendant des pertes sur une variation de plusieurs ordre de grandeur de la partie imaginaire de la permittivité du métal (cf. fig. 3.6.b). Ceci traduit le fait que le nombre de modes guidés n'est pas modifié. En l'absence de perte, la lorentzienne tend vers une distribution de Dirac d'intégrale finie. Finalement, les pertes lors de la propagation dans le guide n'ont que très peu d'influence sur le couplage d'un émetteur à un guide plasmonique infini. Que le plasmon se propage indéfiniment ou pas, le taux de couplage dans le mode plasmon restera inchangé.

3.2.3 Facteur de qualité et volume effectif

L'expression usuelle du facteur de Purcell fait intervenir le facteur de qualité du mode qui dépend des pertes (cf. eq. 3.4)

$$F_p = \frac{\Gamma_{\text{SPP}}}{n_1 \Gamma_0} = \frac{3}{4\pi^2} \left(\frac{\lambda}{n_1}\right)^3 \frac{Q}{V_{eff}}, \qquad (3.4)$$

où Q est le facteur de qualité du mode et V_{eff} son volume effectif. Nous cherchons donc à expliciter l'absence du rôle des pertes dans ce facteur. Dans le cas présent, le facteur de qualité peut s'écrire sous la forme suivante : $Q = k_{SPP}/\Delta k_{SPP} = n_{SPP}k_0L_{SPP}$ et est représenté figure 3.7. On obtient des variations entre 10 et 60 pour des rayons variant entre 10 et 100 nm. Des facteurs de qualité aussi faibles sont caractéristiques de pertes Joule importantes.



FIGURE 3.7 – Facteur de qualité en fonction du rayon d'un nanofil pour $\lambda = 800 nm$.

Le confinement du mode dans le plan transverse à la propagation est caractérisé par une surface effective A_{eff} que l'on peut estimer grâce à la longueur de propagation du plasmon. En effet, le plasmon s'étend sur cette longueur caractéristique et le volume modal peut s'écrire sous la forme $V_{eff} \sim A_{eff} \times L_{SPP}$. Ceci est cohérent avec la définition usuelle des volumes effectifs ($V_{eff} \propto \int |\mathbf{E}|^2 d^3 \mathbf{r} = \int |\mathbf{E}^{2D}|^2 e^{-2z/L_{SPP}} d^3 \mathbf{r}$) [99]. Comme le facteur de Purcell est proportionnel à Q/V_{eff} et que ces deux termes sont proportionnels à L_{SPP} , F_P n'est proportionnel qu'à la section effective A_{eff} (cf. eq. 3.4). Ainsi, le taux de couplage au plasmon propagatif ne dépend que de la surface effective du mode. Le couplage de l'émetteur dipolaire au SPP ne dépend donc que du profil modal transverse, ce qui est pertinent car cela correspondrait à une intégrale de recouvrement entre l'émission dipolaire et le profil modal. Finalement, une fois le plasmon excité, qu'il se propage faiblement ou non, le taux de couplage est inchangé et ne dépend pas de la longueur de propagation. En utilisant les expressions (3.3) and (3.4), il est possible de déduire le volume effectif du mode plasmon. Pour un dipôle d'orientation aléatoire à proximité du nanofil, on obtient :

$$V_{eff} = 12n_{\rm SPP}^2/\pi \times L_{\rm SPP}^2/\Delta\rho_{tot}^{\rm 2D}(\mathbf{R}, k_z)$$
(3.5)

avec

$$\Delta \rho_{tot} = \Delta \rho_{\hat{\rho}}(\mathbf{R}, k_{\text{SPP}}) + \Delta \rho_{\hat{\phi}}(\mathbf{R}, k_{\text{SPP}}) + \Delta \rho_{\hat{z}}(\mathbf{R}, k_{\text{SPP}}).$$
(3.6)

En utilisant le lien entre le volume effectif et la section effective $V_{eff} = A_{eff} \times L_{SPP}$, on obtient par identification :

$$A_{eff} = \frac{12}{\pi} n_{\rm SPP}^2 \frac{\mathcal{L}_{\rm SPP}}{\Delta \rho_u^{\rm 2D}(\mathcal{R}, k_{\rm SPP})} \,. \tag{3.7}$$

La figure 3.8.a) représente le volume modal plasmonique d'un nanofil d'or de rayon variant entre 10 nm et 110 nm. L'ordre de grandeur de la surface effective présentée dans l'insert montre sans équivoque le confinement des champs sur des dimensions bien en dessous de la longueur d'onde. Cette surface est une propriété intrinsèque du mode.

À titre de comparaison, la figure 3.8.b montre le confinement modal à $\lambda = 525nm$ correspondant au régime quasi-statique. Celui-ci est encore 2 ordres de grandeurs plus confinés que dans le régime propagatif mais au prix de fortes pertes comme discuté plus haut.



FIGURE 3.8 – Volume effectif normalisé et surface modale (encart) en fonction du rayon du nanofil d'or pour (a) $\lambda = 800 \, nm$ et (b) $\lambda = 525 \, nm$.

3.3 Régime quasistatique

3.3.1 Taux de couplage radiatif

La limite quasistatique correspond à des pertes Joule importantes. Dans ce régime, il est intéressant de comparer nos calculs à l'approximation quasistatique. Cette dernière considère que le dipôle émetteur induit un dipôle image dans le guide [83]. Les taux de couplage radiatif selon l'orientation de l'émetteur sont donnés par

$$\Gamma_{\mathrm{Rad}}^{\hat{r}} = \left| \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \right| \frac{\mathrm{R}^2}{(\mathrm{R} + d)^2} \tag{3.8}$$

$$\Gamma_{\mathrm{Rad}}^{\widehat{\theta}} = \left| \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \right| \frac{\mathrm{R}^2}{(\mathrm{R} + d)^2} \tag{3.9}$$

$$\Gamma_{\mathrm{R}ad}^{\widehat{z}} = 1 \tag{3.10}$$



FIGURE 3.9 – Taux radiatif normalisé pour une nanosource placée à une distance d d'un guide cylindrique d'or. Trois orientations sont envisagées a) radial, b) orthoradial et c) longitudinal. Le rayon du guide est de R = 10 nm et la longueur d'onde d'émission et $\lambda = 525 nm$. QS correspond à l'approximation quasistatique.

Le taux radiatif est représenté sur la figure fig.3.9. On compare le résultat obtenu avec notre méthode (Γ_{Rad} calculé en annulant numériquement les pertes) avec l'approximation quasistatique. On observe un bon accord entre les méthodes pour les orientations radiale et orthoradiale. Pour l'orientation longitudinale, l'approximation quasistatique ne prédit aucune dépendance avec d ce qui est en accord qualitatif avec les faibles variations de $\Gamma_{rad}^{\hat{z}}$.

Il est utile de préciser que le taux radiatif calculé avec Im (ε_2) = 0 est une approximation grossière en présence de fortes pertes comme c'est le cas à $\lambda = 525$ nm.

À courte distance, on observe des écarts importants entre les deux modèles. Il est vraisemblable qu'à courte distance, l'émetteur excite des modes multipolaires du guide qui peuvent être responsables des variations observées par rapport à l'approximation quasistatique, restreinte au mode dipolaire. Les écarts peuvent également s'expliquer par l'expression de la polarisabilité du guide dans l'approximation quasistatique qui ne prend pas en compte la taille du guide. Cependant, il est remarquable que le taux radiatif lorsque l'émetteur est à faible distance d'un guide plasmonique ressemble à celui d'une sphère métallique pour les deux orientations de dipôle [71] : radiale (fig. 3.9.a) et orthoradiale (fig. 3.9.b). En effet, le principe est identique dans les deux géométries et dépend du dipôle induit par l'émetteur.

3.3.2 Taux de couplage non-radiatif

Dans l'approximation quasistatique, les taux de couplage non-radiatif sont valables lorsque l'émetteur est à faible distance de la structure guidante. On obtient alors les mêmes relations que pour un film plat [83].

$$\Gamma_{\text{NR}ad}^{\hat{\theta}} = \text{Im} \ \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \frac{3}{32k_0^3 d^3}$$
(3.11)

$$\Gamma_{\text{NR}ad}^{\hat{z}} = \text{Im} \ \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \frac{3}{32k_0^3 d^3}$$
(3.12)

$$\Gamma_{\text{NR}ad}^{\hat{r}} = \text{Im} \ \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \frac{3}{16k_0^3 d^3}$$
(3.13)

Les taux non-radiatifs calculés par intégration de la 2D-LDOS sont accompagnés de leur évaluation dans l'approximation quasistatique dans la figure 3.10. On vérifie qu'à courte distance, l'approximation quasi-statique décrit correctement le taux non-radiatif. Même si l'approximation quasistatique surestime ce taux, il faut noter qu'elle ne tient pas compte du plasmon guidé. Cette contribution sera discutée plus loin.



FIGURE 3.10 – Taux non-radiatifs normalisé pour un émetteur dipolaire à 525 nm placé à une distance d d'un nanofil de rayon R = 10 nm. La contribution plasmon a été également ajouté sauf pour l'orientation orthoradiale où $\Gamma_{\text{SPP}} = 0$ [Fig. (bii)]. QS fait référence au régime quasistatique tandis que *exact* correspond au calcul issu de la 2D-LDOS.

3.4 Régime simili-quasistatique

3.4.1 Taux de couplage radiatif et non-radiatif

Pour des petits rayons mais à des longueurs d'onde éloignées de 525 nm, l'indice effectif d'un nanofil augmente fortement. Le mode résultant s'apparente à celui du régime

quasistatique. Nous avons donc testé le modèle quasistatique pour un nanofil de rayon 10 nm mais à une longueur d'onde de $\lambda = 800 nm$ (cf. fg. 3.11).



FIGURE 3.11 – Taux normalisés radiatif (a) and non-radiatif (b) selon les trois orientations d'un émetteur dipolaire placé à une distance d d'un nanofil d'or. Le rayon du fil est de R = 10 nm et la longueur d'émission est de $\lambda = 800 nm$. La contribution plasmonique au taux non-radiatif est également indiquée sauf pour l'orientation orthoradial pour laquelle $\Gamma_{SPP} = 0$ [Fig. (bii)]. QS correspond à l'approximation quasi-statique tandis que *exact* correspond à l'intégrale de la 2D-LDOS.

Les taux radiatifs obtenus avec l'intégration de la 2D-LDOS sont alors en très bon accord avec le modèle quasistatique.

Pour les orientations radiales et longitudinales, l'approximation quasistatique sousestime le taux non-radiatif car la contribution plasmonique n'est pas prise en compte dans ce modèle. Pour l'orientation orthoradiale, la contribution plasmonique étant nulle, le modèle quasistatique est plus conforme aux variations attendues à proximité du guide (d < 10 nm).

3.4.2 Taux de couplage plasmonique

Le taux de couplage plasmonique, élément crucial dans la détermination du facteur β , est présenté dans la figure 3.12. Les valeurs calculées sont obtenues avec perte, sans-perte et dans l'approximation quasi-statique pour une longueur d'onde de $\lambda = 800 nm$ d'un émetteur orienté radialement.

On remarque que l'influence des pertes sur le taux de couplage est quasi inexistant, conformément à la description effectuée plus haut. Cependant, on observe un très faible écart entre les taux calculés avec et sans perte pour le fil de rayon 100 nm et une orientation dipolaire radiale (cf. fig.3.12.b.iii). Ce faible écart peut être attribué à l'apparition du mode HE₁₁ pour des rayons élevés (cf. fig. 2.5). Ce dernier n'est pas pris en compte dans le modèle sans perte et affecte la LDOS.

Le taux de couplage plasmonique vérifie également le comportement évoqué plus haut à savoir qu'il tend vers un comportement quasistatique lorsque le rayon du nanofil est petit. En revanche, pour des rayons supérieur à 100 nm, l'écart au modèle quasi-statique devient de plus en plus important [98].

Ainsi, le confinement du champ électromagnétique sur une section voisine de celle du guide permet d'appliquer l'approximation quasistatique pour des rayons dix fois plus petits que la longueur d'onde. Cette approximation devient caduque si la section du guide est plus importante.



FIGURE 3.12 – Taux normalisé dans le mode plasmon pour différents rayons (R=10, 50 et 100 nm). La longueur d'onde d'émission du dipôle est $\lambda = 800 nm$. Le dipôle émetteur est orienté longitudinalement (a) et radialement (b).

3.5 Taux coopératif

3.5.1 Présentation

Nous avons vu que l'énergie émise par un nano-émetteur peut exciter efficacement un mode de guide plasmonique. Il est donc naturel de s'intéresser au couplage de deux émetteurs situés à proximité d'un tel guide. En effet, les sondes fluorescentes sont largement utilisées pour étudier les interactions inter moléculaires. Le FRET¹ ou transfert d'énergie résonant entre un donneur et un accepteur conduit à une émission lumineuse de l'accepteur lorsque les molécules sont très proches (de l'ordre du nm). La présence d'un nanofil entre deux émetteurs permet un couplage sur une plus grande distance. Le contrôle du transfert d'énergie résonant entre deux émetteurs distants peut trouver des applications pour le transfert d'information à l'échelle nano [100], la réalisation de portes logiques nano-optiques [101, 57] voire l'intrication de deux qubits [61, 62]. Le couplage par le nanofil peut favoriser une émission (on parle alors de superradiance) ou au contraire la défavoriser (subradiance) [55].

Considérons deux émetteurs couplés par la présence d'un nanofil métallique. Le couplage de ces deux émetteurs impose une description quantique en considérant les états excités noté (e) et au repos noté (g) pour chaque atome. En utilisant la base suivante :

$$|ee>; |gg>; |+>= (|eg>+|ge>)/\sqrt{2}; |->= (|eg>-|ge>)/\sqrt{2}$$



FIGURE 3.13 – Présentation des modes de relaxation de deux émetteurs couplés.

On note alors Γ_{11} , le taux d'émission d'un atome unique et Γ_{12} une contribution due au couplage. Les différents modes de relaxation sont présentés fig. 3.13. On montre alors que le taux de relaxation du concernant l'état $|+\rangle$ (resp. $|-\rangle$) est donné par $\Gamma_{11} + \Gamma_{12}$ (resp. $\Gamma_{11} - \Gamma_{12}$) [57]. Le taux de couplage entre les deux émetteurs de moment dipolaire p_1 et p_2 s'exprime par [58, 59] :

$$\Gamma_{12} = \frac{4\omega^2 p_1 p_2}{\pi c^2 \hbar \varepsilon_0} \operatorname{Im} \left[\boldsymbol{u}. \mathbf{G}_{12}(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2, \omega). \boldsymbol{u} \right]$$
(3.14)

où u est l'orientation commune des dipôles.

^{1.} Förster Resonance Energy Transfer

3.5.2 Régime quasistatique

Bien qu'étant un mode lent, le mode quasi-statique plasmonique présente peu d'intérêt pour favoriser le taux coopératif (cf. fig. 3.14). En effet, la faible valeur du facteur de Purcell associé à une distance de propagation très faible ne permet pas un bon couplage entre les émetteurs. Les oscillations du taux Γ_{12} sont de l'ordre de λ montrant que le couplage s'effectue par voie radiative. La valeur de Γ_{SPP} est obtenue par extrapolation à $\lambda = 525$ nm.



FIGURE 3.14 – Taux coopératif Γ_{12} de deux émetteurs dipolaires en fonction de la distance de séparation Δz pour trois orientations : longitudinale et orthoradiale. Les lignes pointillées rouge et verte renvoient aux contributions plasmonique et radiative respectivement.

3.5.3 Régime simili-QS

Le taux coopératif du système est alors obtenu par intégration de la 2D-LDOS et celui d'un atome unique est repris des calculs précédents. Le taux coopératif normalisé par le taux d'émission dans un milieu homogène est représenté fig. 3.15.

Les valeurs positives et négatives du taux Γ_{12} correspondent à la superradiance et à la subradiance de deux émetteurs couplés. On remarquera que seul le taux total défini par $\Gamma_{11} \pm \Gamma_{12}$ possède un sens physique et est défini positif.

Les contributions plasmoniques et radiatives sont également ajoutées pour une meilleure compréhension. On observe tout d'abord des oscillations amorties dont la période spatiale est très voisine de la longueur d'onde plasmon pour une position des émetteurs proche du guide (5 nm et 22 nm). Ce phénomène s'explique par la contribution importante du plasmon dans le couplage pour ces distances. Les pertes Joule lors de la propagation du plasmon sont responsables de la décroissance des oscillations. L'affaiblissement du mode plasmonique diminue alors le couplage des émetteurs lorsque ceux-ci s'éloignent.

Pour des distances plus importantes (d = 61 nm), la contribution non-radiative s'effondre et le taux d'émission est principalement donné par le taux radiatif (cf. chap. 2). L'émission coopérative présente alors une oscillation de période $\lambda_0 \sim 5\lambda_{\text{SPP}}$. L'indice effectif du mode plasmon étant de $n_{eff} = 5,155$, la période est voisine de $5 \times \lambda_{\text{SPP}}$ ce qui correspond à la longueur d'onde d'émission dans le milieu homogène. Le couplage est alors presque 100 fois plus faible lorsque celui-ci est principalement par voie radiative.



FIGURE 3.15 – a) facteur β à proximité d'un nanofil d'or de rayon R = 10 nm pour un émetteur à $\lambda = 800 nm$ en fonction de l'éloignement de l'émetteur notée d. b-d) Taux coopératif Γ_{12} de deux émetteurs dipolaires en fonction de la distance de séparation Δz pour trois distances d'éloignement au guide notée d. Deux orientations sont envisagées : longitudinale et orthoradiale. Les lignes pointillées rouge et verte renvoient aux contributions plasmonique et radiative respectivement.

Bien que le terme Γ_{12} soit plus important à faible distance, le positionnement des émetteurs à 22 nm est le plus efficace. En effet, le taux ayant un sens physique est : $(\Gamma_{11} + \Gamma_{12})/\Gamma_{tot}$ qui peut alors s'exprimer sous la forme :

$$\frac{\Gamma_{11} + \Gamma_{12}}{\Gamma_{tot}} = \beta \left(1 + \frac{\Gamma_{12}}{\Gamma_{11}} \right) \tag{3.15}$$

Le couplage sera donc d'autant plus efficace que le facteur β sera optimisé. En effet, lorsque le transfert se fait majoritairement par le plasmon guidé, le rapport $\Gamma_{12}/\Gamma_{11} \sim \cos(k_{\text{SPP}}\Delta z)e^{-\Delta z/L_{\text{SPP}}}$ ne dépend pas de la distance au guide. Ainsi, à proximité du guide, le couplage entre les deux émetteurs sera le plus efficace pour une distance assurant un couplage optimum de chaque atome au guide (β maximum).

Nous avons également représenté sur la figure 3.16 le taux d'excitation coopératif pour les deux autres orientations : orthoradiale et longitudinale, pour une longueur d'onde d'émission identique de $\lambda = 800 nm$. Le comportement pour un dipôle longitudinal est très proche d'une orientation radiale, avec un taux de couplage plus faible en raison d'un taux plasmonique également plus faible pour cette orientation. En revanche, pour l'orientation orthoradiale, le couplage par un plasmon (mode TM) est impossible en raison de l'absence de champ orthoradial. La principale contribution du taux coopératif est donc radiative. La période spatiale est plus grande, donnée par la longueur d'onde dans le milieu $\lambda_0 \sim 5\lambda_{SPP}$.



FIGURE 3.16 – Taux coopératif Γ_{12} de deux émetteurs dipolaires en fonction de la distance de séparation Δz pour trois distances d'éloignement au guide notée d. deux orientation son envisagées : longitudinale et orthoradiale. Les lignes pointillées rouge et verte renvoient aux contributions plasmonique et radiative respectivement.

3.6 Conclusion

Nous avons montré qu'il est possible d'obtenir un très fort confinement modal en régime quasi-statique mais alors les pertes sont si importantes que les propriétés de propagation sont perdues. Il est alors préférable d'utiliser les résonances plasmons localisées [73]. Par contre, en considérant des nanofils de faibles rayons en régime retardé, il est possible de profiter à la fois du fort confinement modal et du guidage pour coupler des émetteurs distants.

D'autre part, le meilleur confinement est obtenu pour de faibles rayons, permettant un excellent couplage avec un émetteur voisin. Les longueurs de propagation, quant-à-elles, augmentent pour les rayons élevés. Dans les deux chapitres suivants, nous discuterons de la conversion d'un mode SPP très délocalisé vers un mode fortement confiné dans une fibre métallisée et étirée (cf. chap. 4). Nous montrerons que ce dispositif permet de coupler très efficacement un émetteur à un mode guidé de la fibre optique et ainsi de réaliser une nanosource optique fibrée (cf. chap. 5).

Chapitre 4

Sondes plasmoniques pour le champ proche optique

Introduction

Les plasmons de surface permettent de confiner efficacement le champ électromagnétique sur des échelles inférieures à la longueur d'onde. Par contre, leur excitation n'est pas aisée. C'est pourquoi on a recourt à différentes stratégies pour transférer l'énergie d'une onde électromagnétique à celle d'un plasmon. Les antennes plasmoniques formées d'un arrangement de nano-particules métalliques en sont un exemple[29].

Certains travaux récents ont aussi montré qu'il est possible d'accrocher ces nanoantennes à l'extrémité d'une sonde de microscope à force atomique et ainsi d'en contrôler la position [35, 102]. Enfin, une dernière géométrie consiste à exciter une structure plasmonique grâce à un mode de fibre, assurant ainsi une manipulation aisée du signal optique ainsi qu'un excellent confinement lumineux sur la structure métallique.



FIGURE 4.1 – Champ électrique radial E_r dans une fibre optique étirée et métallisée par de l'or (simulation COMSOL). La fibre est excitée par d'un mode TM_{01} à $\lambda = 800$ nm. Le rayon initial est de 600 nm, l'épaisseur de métal de 40 nm, l'angle de la partie étirée est de 15°.

Des modélisations ont montré que l'accrochage d'un bâtonnet d'or ou d'argent à l'extrémité d'une fibre étirée peut constituer une sonde efficace [69, 103]. Ce dispositif reste
toute fois difficile à réaliser. Une alternative prometteuse et plus simple à mettre en oeuvre consiste à métalliser la fibre étirée non pas avec un film op aque mais avec de l'or ou de l'argent supportant un SPP. En effet, ce la assure une excellente propagation grâce au mode guidé de la fibre ainsi qu'un fort confinement du plasmon en sortie $[38,\,37,\,104]$ (cf. fig. 4.1) .

L'efficacité du transfert d'énergie entre le mode guidé de la fibre vers le plasmon localisé en sortie de pointe dépend fortement de la géométrique considérée (angle, forme, épaisseur du film métallique...) ainsi que de la polarisation du mode guidé (radial, linéaire...). Il est donc nécessaire de bien comprendre les mécanismes de transfert d'énergie lors de la propagation. Récemment, Ding *et al* ont appliqué la théorie des modes couplés pour cette configuration aux longueur d'onde télécom [105]. Dans le proche infrarouge, les pertes Joule dans le métal sont suffisamment faibles pour considérer les pertes comme une perturbation dans la théorie des modes couplés. En revanche, dans le domaine optique, les pertes ne sont plus négligeables et la théorie des modes couplés doit être adaptée.

Dans ce chapitre, nous étudierons donc la conversion des modes supportés par une fibre optique étirée recouverte d'une mince couche de métal, en tenant compte des pertes. Ainsi, dans un premier temps, nous caractériserons les plasmons se propageant sur un cylindre métallique ou une cavité métallique. Ensuite, nous étudierons les modes hybrides d'une fibre optique métallisée en fonction de son rayon. Pour finir, nous discuterons le couplage entre ces modes lors de la propagation le long d'une fibre étirée.

4.1 Modes d'une fibre métallisée

4.1.1 Modes hybrides d'une fibre métallisée

Afin d'appréhender la propagation des modes d'une fibre optique métallisée et étirée, nous commençons par caractériser les modes d'une fibre métallisée placée dans l'air en fonction de son rayon. Nous montrerons que les modes de ces structures résultent de l'hybridation de deux modes portés par des structures différentes. L'une est un cylindre métallique placée dans l'air, l'autre est une cavité métallique remplie du diélectrique constituant la fibre métallisée (cf. fig. 4.2).



FIGURE 4.2 – Principe d'hybridation des modes d'une fibre métallisée

Pour mieux comprendre la conversion du mode photonique de la fibre en mode plasmonique, nous présentons en détail ces différents modes.

4.1.2 Cylindre métallique

Un cylindre métallique infini, de rayon R, de permittivité ε_1 est placé dans un milieu homogène de permittivité ε_2 . La valeur de la permittivité de l'or est tirée de [67]. Nous avons établi au chapitre 2 que ce nanofil supporte un SPP de vecteur d'onde k_{SPP} et nous avons représenté figure 4.3 la relation de dispersion en fonction du rayon ainsi que la longueur de propagation du mode plasmon (L_{SPP}).



FIGURE 4.3 – Modes plasmons TM d'un cylindre métallique de rayon R plongé dans l'air $(\varepsilon_{air} = 1)$ pour différentes longueurs d'onde.

Pour une longueur d'onde donnée, l'indice effectif du plasmon augmente lorsque le rayon diminue et ne présente pas de rayon de coupure, contrairement aux autres modes de type HE_{nm} [70]. La contribution perpendiculaire au vecteur d'onde (notée $k_{i,\perp} =$ $(\varepsilon_i k_0^2 - k_z^2)^{1/2}$) possède une contribution imaginaire importante puisque k_z est complexe. Ceci traduit le confinement de l'onde électromagnétique dans un plan perpendiculaire à la direction de propagation, avec une distance transverse caractéristique donnée par $\delta \sim 1/|k_i|$ (pour $\lambda = 800$ nm, R = 30 nm, $\delta = 200$ nm cf. fig. 4.4).



FIGURE 4.4 – Modes plasmons TM d'un cylindre métallique ($\varepsilon_2 = -24, 1+1, 5i$), plongé dans un milieu d'indice $\varepsilon = 2, 25$), $\lambda = 800$ nm, R = 30 nm, $k_z/k_0 = 2, 34 + 0, 05i$, L_{SPP} = 1, 3 μ m.

On remarque également que la longueur de propagation L_{SPP} chute fortement lorsque le rayon diminue. En effet, pour des petits rayons, une partie plus importante du champ électrique est dans le métal ce qui se traduit par une augmentation des pertes Joule et donc une diminution de la longueur de propagation. Ce phénomène est d'autant plus marqué que la longueur d'onde diminue car les pertes dans le métal sont plus importantes dans le domaine visible que dans le proche infra-rouge. Pour $\lambda = 600$ nm, la longueur de propagation est de l'ordre de la longueur d'onde pour un rayon voisin de R ~ 45 nm.

4.1.3 Cavité métallique

Sur la même base que la section précédente, il est possible d'obtenir les modes TM se propageant à l'intérieur d'une cavité cylindrique (cf. fig. 4.5).



FIGURE 4.5 – Modes plasmons TM d'une cavité métallique de rayon R contenant un milieu diélectrique de permittivité $\varepsilon_1 = 2, 25$.

Le mode TM_{01} est un mode de type plasmon de surface tandis que les modes suivants sont similaires à des modes de fibre avec un maximum du champ électrique au centre de la cavité (cf. fig 4.6). Il est important de remarquer que cette fois ci, les modes deviennent réactifs. Pour des rayons inférieurs à 350 nm (resp. 800 nm), le mode TM_{01} (resp. TM_{02}) ont des constantes de propagation qui présentent une partie imaginaire plus importante que la partie réelle. Il ne peut donc plus se propager à l'intérieur de la cavité.



FIGURE 4.6 – Norme du champ électrique pour les modes plasmons TM_{01} et TM_{02} d'une cavité métallique de rayon $R = 1 \ \mu m$ contenant un milieu diélectrique de permittivité $\varepsilon_1 = 2.25$.

4.1.4 Relation de dispersion d'une fibre métallisée

Écriture des champs

On considère une fibre métallisée de rayon intérieur R_1 et extérieur R_2 . L'intérieur est constituée d'un milieu diélectrique de permittivité ε_1 . Le métal, ici l'or, a pour permittivité

notée ε_2 . Le milieu extérieur est de l'air, on note ε_3 sa permittivité. On ne s'interesse qu'aux modes TM pouvant se propager dans la fibre. La géométrie utilisée ici est cylindrique (cf. fig 4.7).



FIGURE 4.7 – Géométrie du système. $\varepsilon_1 = 2.25, \varepsilon_2 = -115 + 11i$ pour $\lambda = 1550$ nm et $\varepsilon_3 = 1$.

Pour un mode TM, seules les composantes suivantes sont non-nulles :

$$E_r, E_z$$
 et H_{θ} (4.1)

Les solutions sont données par des fonctions de Bessel cylindriques [68, 106] et répertoriées dans le tableau 4.1 où les coefficients a_i sont complexes et à déterminer. On note k_z le vecteur d'onde et $k_i = (\varepsilon_i k_0^2 - k_z^2)^{1/2}$ les composantes perpendiculaires à la propagation avec $k_0 = \omega/c$.

TABLE 4.1 – Composantes du champ électromagnétique

coeur	métal	
$\mathbf{E}_z^1(r) = a_1 \mathbf{J}_0(k_{1\perp}r)$	$E_z^2(r) = a_2 I_0(k_{2\perp}r) + a'_2 K_0(k_{2\perp}r)$	
$\mathbf{E}_r^1(r) = i \frac{k_z}{\underline{k_{\perp}}} a_1 \mathbf{J}_0'(k_{1\perp}r)$	$\mathbf{E}_r^2(r) = i \frac{k_z}{k_{2\perp}} \left(a_2 \mathbf{I}_0'(k_z) \right)$	$_{2\perp}r) + a_2' \mathbf{K}_0'(k_{2\perp}r) \big)$
$\mathrm{H}^{1}_{\theta}(r) = i \sqrt{\frac{\varepsilon_{0}}{\mu_{0}}} \frac{\varepsilon_{1}\omega}{k_{1\perp}} a_{1} \mathrm{J}'_{0}(k_{1\perp}r)$	$\mathrm{H}_{\theta}^{2}(r) = i \sqrt{\frac{\varepsilon_{0}}{\mu_{0}}} \frac{\varepsilon_{2\omega}}{k_{2\perp}} \left(a_{2} \mathrm{I}_{0}^{\prime} \right)$	$a_{0}(k_{2\perp}r) + a_{2}'\mathbf{K}_{0}'(k_{2\perp}r))$
	Milieu externe	
E	$\mathbf{E}_z^3(r) = a_3 \mathbf{K}_0(k_{3\perp} r)$	
$\mathbf{E}_r^3(r) = \underline{i \frac{k_z}{k_{3\perp}}} \mathbf{K}_0'(k_{3\perp}r)$		
$\mathbf{H}_{\theta}^{3}(r) = i \sqrt{\frac{\varepsilon_{0}}{\mu_{0}} \frac{\varepsilon_{3\omega}}{k_{3\perp}}} a_{3} \mathbf{K}_{0}'(k_{3\perp}r)$		

Indices effectifs des modes TM

En appliquant les relations de continuité du champ électrique longitudinal et du champ magnétique transverse, on obtient :

$$\begin{cases} E_{z}^{1}(R_{1}) = E_{z}^{2}(R_{1}) \\ E_{z}^{2}(R_{2}) = E_{z}^{3}(R_{2}) \\ H_{\theta}^{1}(R_{1}) = H_{\theta}^{2}(R_{1}) \\ H_{\theta}^{2}(R_{2}) = H_{\theta}^{3}(R_{2}) \end{cases} \text{ soit } \begin{cases} a_{1}J_{0}(k_{1\perp}R_{1}) = a_{2}I_{0}(k_{2\perp}R_{1}) + a'_{2}K_{0}(k_{2\perp}R_{1}) \\ a_{2}I_{0}(k_{2\perp}R_{2}) + a'_{2}K_{0}(k_{2\perp}R_{2}) = a_{3}K_{0}(k_{3\perp}R_{3}) \\ i\frac{\varepsilon_{1\omega}}{k_{1\perp}}J'_{0}(k_{1\perp}R_{1}) = i\frac{\varepsilon_{2\omega}}{k_{2\perp}} \Big[a_{2}I'_{0}(k_{2\perp}R_{1}) + a'_{2}K'_{0}(k_{2\perp}R_{1})\Big] (4.2) \\ i\frac{\varepsilon_{2\omega}}{k_{2\perp}} \Big[a_{2}I'_{0}(k_{2\perp}R_{2}) + a'_{2}K'_{0}(k_{2\perp}R_{2})\Big] = i\frac{\varepsilon_{3\omega}}{k_{3\perp}}K'_{0}(k_{3\perp}R_{2}) \end{cases}$$

On obtient ainsi un système s'écrivant sous la forme

$$\begin{bmatrix} \mathbf{J}_{0}(k_{1\perp}\mathbf{R}_{1}) & -\mathbf{I}_{0}(k_{2\perp}\mathbf{R}_{1}) & -\mathbf{K}_{0}(k_{2\perp}\mathbf{R}_{1}) & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{I}_{0}(k_{2\perp}\mathbf{R}_{2}) & \mathbf{K}_{0}(k_{2\perp}\mathbf{R}_{2}) & -\mathbf{K}_{0}(k_{3\perp}\mathbf{R}_{3}) \\ i\frac{\varepsilon_{1\omega}}{k_{1\perp}}\mathbf{J}_{0}'(k_{1\perp}\mathbf{R}_{1}) & -i\frac{\varepsilon_{2\omega}}{k_{2\perp}}\mathbf{I}_{0}'(k_{2\perp}\mathbf{R}_{1}) & -i\frac{\varepsilon_{2\omega}}{k_{2\perp}}\mathbf{K}_{0}'(k_{2\perp}\mathbf{R}_{1}) & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & i\frac{\varepsilon_{2\omega}}{k_{2\perp}}\mathbf{I}_{0}'(k_{2\perp}\mathbf{R}_{2}) & i\frac{\varepsilon_{2\omega}}{k_{2\perp}}\mathbf{K}_{0}'(k_{2\perp}\mathbf{R}_{2}) & -i\frac{\varepsilon_{3\omega}}{k_{3\perp}}\mathbf{K}_{0}'(k_{3\perp}\mathbf{R}_{2}) \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} a_{1} \\ a_{2} \\ a_{2}' \\ a_{3} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

Une solution non triviale existe lorsque le déterminant de cette matrice est nul. Le zéro est obtenu en étudiant la fonction complexe det $M(k_z)$ où M est la matrice ci-dessus en ayant pris soin de remplacer les vecteurs d'onde perpendiculaire par $k_{i\perp} = (\varepsilon_i k_0^2 - k_z^2)^{1/2}$. La méthode numérique utilisée est celle de Newton-Raphson [107].



FIGURE 4.8 – Relation de dispersion pour différents rayons à $\lambda = 1550$ nm, d = 80 nm

Les trois premiers modes TM_{0n} d'une fibre métallisée sont représentés sur la figure 4.8 (lignes continues). Les modes TM_{01} d'un nanofil et d'une cavité métalliques obtenues précédemment sont rappelées (lignes pointillées). Le mode TM_{01} de la fibre apparaît clairement comme une hybridation du mode du nanofil et de celui de la cavité. Plus précisément, la relation de dispersion est proche de celle d'une cavité pour les grands rayons et suit celle du nanofil aux petits rayons. Ce mode hybride décrit la conversion du mode de type « fibre » à un mode plasmon le long de la fibre optique étirée [105].

Pour cette épaisseur d'or et à cette à cette longueur d'onde (d = 80 nm et $\lambda = 1550$ nm), les modes TM₀₂ et TM₀₃ deviennent à fuites pour des rayons inférieurs à R_{2,TM₀₂} < 600 nm et R_{2,TM₀₃} < 1300 nm. Le vecteur d'onde vérifie alors $k_z < \sqrt{\varepsilon_3}k_0$.

Croisement et anti-croisement

Pour bien comprendre la conversion d'un mode à un autre, on étudie le comportement des parties réelles et imaginaires de k_z à proximité du croisement. Dans le plan complexe, les indices des modes sont différents. On aboutit ainsi à deux situations distinctes :

 soit les parties réelles des indices sont égales et les parties imaginaires différentes (régime de couplage faible);



FIGURE 4.9 – Modes TM pour $\lambda = 1550$ nm, d = 80 nm, $R_2 = 1500$ nm

 soit les parties réelles des indices sont différentes et les parties imaginaires égales (régime de couplage fort).

Sur la figure 4.10, on observe alors deux phénomènes dépendant de l'épaisseur de métal pour une longueur d'onde donnée. Il est possible de passer d'un croisement à un anti-croisement en diminuant l'épaisseur de métal. Nous attribuons ce comportement à l'importance du recouvrement entre les champs des plasmons internes et externes. En effet, pour un mode donné, la distance caractéristique de pénétration de l'onde dans le métal est donnée par $\delta = 1/\kappa_2 = i/k_{2\perp}$. On obtient par exemple : $\delta = 23$ nm pour $\lambda = 1,55 \ \mu$ m. On observe que l'épaisseur caractéristique d de changement de régime est voisine de 4δ :

- pour $d > 4\delta$, le couplage entre les modes interne et externe est faible, on observe un croisement des parties réelles;
- pour $d < 4\delta$ le couplage entre les modes est fort, on observe un anti-croisement des parties réelles.

Nous avons désormais caractérisé les modes hybrides supportés par la fibre métallisée. Dans le prochain paragraphe, nous décrivons le transfert d'énergie depuis le mode de type fibre confiné dans le coeur jusqu'au mode de type plasmon confiné sous la limite de diffraction à la sortie de la pointe.



FIGURE 4.10 – Phénomènes de croisement pour $\lambda = 1550$ nm, épaisseur d'or d = 80 nm (a), d = 90 nm (b)

4.2 Théorie des modes couplés en présence de pertes

4.2.1 Fibre métallisée étirée

On considère une fibre étirée de rayon $R_1(z)$ métallisée à partir de z > 0. On notera d l'épaisseur de métal (fig. 4.11).

On cherche à obtenir le champ résultant de la propagation d'une onde électromagnétique dans la fibre. On suppose que le champ électromagnétique qui se propage dans la fibre \mathbf{E}_{tot} peut s'écrire comme une combinaison linéaire des champs modaux \mathbf{e}_j d'une fibre infinie coïncidant à l'abscisse z avec la fibre réelle. En ne considérant que les modes TM_{0n} , l'invariance par rotation autour de Oz permet d'exclure la dépendance en θ .



FIGURE 4.11 – Géométrie du système

L'écriture du champ réel est donc

$$\mathbf{E}_{\text{tot}}(r,z) = \sum_{j} \left[b_{j}(z) + b_{-j}(z) \right] \boldsymbol{e}_{j} \left(r, \beta(z) \right)$$
(4.3)

où Σ_j est la somme sur les différents modes, $\beta(z)$ est le vecteur d'onde longitudinal d'une fibre infinie de même caractéristique que la fibre réelle à l'abscisse z, $b_j(z)$ est l'amplitude du champ modal orthonormé e_j . La dépendance du champ modal e_j en fonction de z est donc implicite. Le coefficient b_{-j} est associé à un mode contra-propagatif.

Pour des fibres de rayon de départ inférieures à 3 μ m, il n'existe que quatre modes TM (cf. fig. 4.10), il est donc raisonnable de ne prendre en compte que les trois premiers modes (TM₀₁, TM₀₂ et TM₀₃) pour étudier une propagation en éclairant la fibre métallisée à partir d'un mode TM₀₂ voisin d'un mode de fibre. De plus, on néglige les réflexions pouvant se produire entre deux sections de rayons différents. Ceci revient à supposer un transfert adiabatique d'énergie et sera discuté en détail plus loin. Finalement, on obtient

$$\mathbf{E}_{\text{tot}}(r,z) = \sum_{j=1}^{3} b_j(z) \boldsymbol{e}_j(r,\beta(z))$$
(4.4)

où j = 1, 2, ou 3. En présence de pertes, la normalisation des champs e_j est donnée par intégration sur une section de guide infinie

$$N_{jk} = \frac{1}{2} \Big| \int_{A_{\infty}} (\boldsymbol{e}_j \wedge \boldsymbol{h}_k) . \boldsymbol{z} dA \Big| = \delta_{jk}$$
(4.5)

où δ_{jk} est le symbole de Kronecker. On retrouve l'intégrale de la valeur moyenne du vecteur de Poynting en l'absence de perte puisqu'alors $h_k = h_k^*$, avec '*' désignant l'opération de conjugaison. Par contre, en présence de pertes, cette condition d'orthonormalisation ne porte pas sur l'énergie [68]. L'expression complète des champs orthonormés pour une configuration cylindrique est donnée en annexe C.1.

4.2.2 Coefficient de couplage

Equations de propagation du champ électromagnétique

À partir des équations de Maxwell, et sous réserve de la seule hypothèse de combinaison linéaire du champ total (eq. 4.3), il est possible d'obtenir des équations couplées permettant de contrôler l'évolution de l'amplitude de chacun des modes. L'approche originale utilisée ici est de ne pas traiter les pertes comme un ajout mais de les intégrer directement au modèle. Le détail des calculs se situe dans l'annexe C.2. L'amplitude de chacun des modes vérifient alors les équations de propagation suivantes :

$$b'_{i}(z) - i\beta_{j}b_{j}(z) = \Sigma_{k}C_{jk}b_{k}(z)$$

$$(4.6)$$

avec C_{jk} le coefficient de couplage entre les modes j et k défini par

$$C_{jk} = \frac{1}{4N_j} \frac{k_0}{\beta_j - \beta_k} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \int_{A_\infty} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \boldsymbol{e}_j \cdot \boldsymbol{\widetilde{e}}_k \cdot dA$$
(4.7)

où $\tilde{e}_k = e_{k,r} - e_{k,z}$. Cette expression fait apparaître l'intégrale de recouvrement entre les deux modes considérés. Dans le cas d'un système sans perte, le champ $e_{r,j}$ est imaginaire pur et $e_{z,j}$ est réel de sorte que $e_j = \tilde{e}_j^*$. Le terme \mathcal{N}_j s'identifie au coefficient de normalisation ($\mathcal{N}_j = 1$) et on retrouve l'expression usuelle [105]

$$C_{jk} = \frac{1}{4} \frac{k_0}{\beta_j - \beta_k} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \int_{A_\infty} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \boldsymbol{e}_j \cdot \boldsymbol{e}_k^* \cdot dA$$
(4.8)

Nous n'avons pu obtenir la forme simplifiée (eq. 4.7) que pour des modes à pertes de type TM. Dans le cas général, il faut utiliser l'expression C.28 donnée en annexe.

L'expression 4.7 fait apparaître au dénominateur la différence entre les constantes de propagation de chacun des modes : $\beta_j - \beta_k$. Ceci montre que le couplage se fait majoritairement entre deux modes proches comme attendu. Il faut noter que cette expression reste définie pour des croisement des relations de dispersion. En effet, les constantes de propagation étant complexes, soient les parties réelles sont différentes, soient ce sont les partie imaginaires, contrairement à la formulation sans perte du coefficient de couplage (cf. fig. 4.12.b).

On voit apparaître également dans le coefficient de couplage (eq. 4.7), un terme correspondant au résultat de l'intégrale de recouvrement sur la section du guide du champ de chaque mode $(e_j.\tilde{e}_k)$. L'allure du coefficient de couplage est proposée figure 4.12 pour une longueur d'onde de $\lambda = 1550$ nm avec croisement (d = 80 nm) et anti-croisement (d = 90 nm).

Seul le premier cas peut être obtenu par la méthode sans perte puisque les parties réelles des modes sont différentes. On remarque que la partie imaginaire du coefficient de couplage est loin d'être négligeable puisqu'elle est du même ordre de grandeur que sa partie réelle. De plus, seule la méthode décrite ici permet d'obtenir le coefficient de couplage pour un croisement des parties réelles.

4.3 Superfocalisation

4.3.1 Représentation du transfert d'énergie

Tous les éléments pour décrire la propagation dans une fibre étirée et métallisée sont maintenant définis. Le champ transverse est donnée à chaque position de la fibre par

$$\mathbf{E}_{t}(r,\phi,z) = \sum_{j} b_{j}(z) \boldsymbol{e}_{tj}(r,\phi,\beta(z)),$$

$$\mathbf{H}_{t}(r,\phi,z) = \sum_{j} b_{j}(z) \boldsymbol{h}_{tj}(r,\phi,\beta(z)).$$
 (4.9)



FIGURE 4.12 – Coefficient de couplage entre TM_{01} et TM_{02} pour $\lambda = 1550$ nm et d = 80 nm (a) puis d = 90 nm (b). L'angle du cône est de $\alpha = 5^{\circ}$.

La puissance peut être obtenue à l'aide du vecteur de Poynting intégré sur une section transverse :

$$\mathcal{P} = \frac{1}{2} \int_{\mathcal{A}_{\infty}} \operatorname{R}e(\mathbf{E} \wedge \mathbf{H}^*) . d\mathbf{A} , \qquad (4.10)$$

$$= \frac{1}{2} \operatorname{Re} \int_{\mathcal{A}_{\infty}} \sum_{j,k} b_j b_k^* (\boldsymbol{e}_j \wedge \boldsymbol{h}_k^*) . \boldsymbol{dA} \,. \tag{4.11}$$

Pour un guide non absorbant, la relation d'orthogonalité entre les modes permet d'écrire :

$$\mathcal{P} = \frac{1}{2} \sum_{j} |b_j|^2 \,. \tag{4.12}$$

L'expression (4.12) est une bonne approximation de la puissance (Eq. 4.11) dans le cas de faibles pertes. La validité de cette approximation est étudiée en annexe C.1.

Afin de pouvoir comparer les résultats quelque soit l'angle, l'amplitude de chaque mode est représentée en fonction du rayon du guide à l'abscisse z considérée. Ce choix permet mettre en évidence les transferts lorsque le rayon de la fibre est celui où apparaît le phénomène de croisement ou d'anti-croisement des indices effectifs.

4.3.2 Couplage fort

On considère qu'un mode TM_{02} se propage dans une fibre métallisée de rayon initial $R_2^0 = 2,5 \ \mu m$ étirée d'un angle de $\alpha = 10^\circ$ jusqu'à un rayon final de 100 nm. Ce mode est celui le plus proche d'un mode de fibre nue. À la longueur d'onde télécom de $\lambda = 1,55 \ \mu m$,

les faibles pertes permettent d'obtenir 50% de la puissance initiale dans le plasmon externe en bout de pointe (cf. fig. 4.13).

Pour une longueur d'onde plus faible $\lambda = 600$ nm. Les pertes Joule sont beaucoup plus importantes, ce qui se traduit par une diminution notable de puissance globale (traits pointillés) plus marquée à l'extrémité de la pointe (cf. fig 4.10). De plus le couplage au mode TM₀₃ est plus marqué contribuant ainsi à la diminution de l'énergie lorsque ce mode devient à fuite vers $R_2 = 600$ nm. Finalement, seule 2% de la puissance initiale est transmise en bout de pointe.



FIGURE 4.13 – Evolution de l'amplitude modale $|b_i|^2$ pour $\lambda = 1.55 \ \mu m$ et $\lambda = 600 \ nm$. L'épaisseur de la couche métallique est de $d = 80 \ nm$ et l'angle de la partie étirée est $\alpha = 10^{\circ}$. Le rayon de la fibre à l'extrémité est de $R_2 = 100 \ nm$.

Connaissant l'expression des champs (4.1) et de l'amplitude de chaque mode, il est possible de construire la carte de propagation du champ le long de la fibre (cf fig. 4.14 et fig. 4.15). La description utilisée n'étant pas valable pour de fortes pertes, nous avons annulé arbitrairement la contribution du mode à fuite lorsque celui-ci devient réactif (Im $\beta > \text{Re } \beta$).

4.3.3 Limites du modèle

Le modèle analytique mis en oeuvre dans cette partie ne traite que des modes TM qui permet d'obtenir un champ confiné à l'extrémité de la fibre On suppose ici que la fibre est étirée avec un angle suffisamment faible pour pouvoir négliger la réflexion du champ. Un critère existant est celui de l'approximation adiabatique [68, 108] supposant que la distance sur laquelle s'effectue le transfert d'énergie est beaucoup plus grande que la longueur d'onde effective. En l'absence de perte (i.e. β réel), on obtient la condition suivante pour un guide conique d'angle α :

$$\left|\frac{\partial R_2(z)}{\partial z}\right| \ll R_2 \frac{|\beta_i - \beta_k|}{2\pi} \quad \text{soit} \quad \alpha \ll R_2 \frac{|\beta_i - \beta_k|}{2\pi} \tag{4.13}$$

Ce critère donne un angle d'ouverture de quelques degrés sauf à proximité des croisement où $\beta_i \approx \beta_k$. Le critère adiabatique prend alors une forme indéfinie.



FIGURE 4.14 – Champ magnétique transverse $\operatorname{Re}(H_{\phi})$ se propageant le long d'une fibre étirée et métallisée. $d = 80 \, nm$ et $\lambda = 1550 \, nm$.



FIGURE 4.15 – Champ magnétique transverse $\operatorname{Re}(H_{\phi})$ se propageant le long d'une fibre étirée et métallisée. d = 80 nm et $\lambda = 600 nm$.

En nous appuyant sur les résultats obtenus avec ce modèle, nous pouvons mettre en place un calcul exact à l'aide du logiciel COMSOL de simulation par méthode des éléments finis (FEM). En particulier, en nous plaçant dans les mêmes conditions, nous avons établi les paramètres de calcul (par exemple, la position et l'épaisseur des couches absorbantes) qui assurent de trouver une solution physique. La figure 4.16 montre une comparaison entre notre modèle et le calcul FEM. Les écarts présents dans les deux représentations peuvent s'expliquer par la réflexion des modes [109]. Ce phénomène n'est pas pris en compte dans notre modèle des modes couplés. De plus, les ondes à fuite apparaissant lorsque l'indice effectif est inférieur à l'indice du milieu ne sont que partiellement prise en compte dans la représentation du champ électromagnétique total. Ces deux approximations conséquentes du modèle analytique conduisent à une surestimation du champ à l'extrémité de la pointe. En revanche, il permet de comprendre les mécanismes mis en jeu lors de la propagation dans la fibre étirée. De plus, l'obtention de l'image COMSOL a été grandement facilitée par le modèle analytique en validant tout d'abord le mode d'excitation. Par exemple, la taille de la fenêtre de calcul et le positionnement judicieux des couches absorbantes est rendu possible grâce à la connaissance de l'extension spatiale des champs modaux.



FIGURE 4.16 – Comparaison du champ magnétique lors de la propagation le long d'une fibre recouverte d'une épaisseur d'or de d = 80 nm. La longueur d'onde est de $\lambda = 1550 nm$.

4.4 Conclusion

Nous avons mis en évidence deux types de modes propagatifs dans une fibre optique métallisée :

- un mode externe ressemblant à un plasmon propagatif correspondant à celui d'un cylindre métallique;
- des modes internes, correspondant soit à un mode de fibre diélectrique (confiné dans le coeur de la fibre) soit à un mode d'une cavité métallique (plasmon interne, confiné à l'interface métal/coeur).

Dans une fibre étirée, la variation de rayon conduit à un couplage des modes et il est donc possible de passer des modes internes (existants au delà d'un rayon critique minimal) au mode externe conduisant à une superfocalisation. On peut ainsi imaginer concentrer la lumière sur des échelles nanométriques et réaliser des pièges optiques grâce au gradient de champ électrique à l'extrémité de la fibre optique.

Le modèle analytique présenté dans ce chapitre a une application très contrainte car il ne considère que les modes TM, les ondes réfléchies sont négligées et les ondes à fuites partiellement prises en compte. Il est mis à profit pour valider les résultats des simulations COMSOL utilisées dans ce chapitre et le suivant et permet de mieux comprendre le processus de superfocalisation.

Nous discutons au prochain chapitre la configuration inversée constituée d'une molécule fluorescente à proximité d'une fibre étirée et métallisée. Nous porterons un effort particulier à l'optimisation de la collecte des photons émis par une molécule fluorescente grâce à une structure plasmonique puis leur propagation et leur conversion du plasmon vers un mode guidé de fibre optique.

Chapitre 5

Nanosource optique fibrée

Introduction

Nous avons vu au chapitre précédent qu'une fibre étirée et métallisée permet de confiner un mode guidé sur un volume sub-longueur d'onde. Réciproquement, nous nous intéressons dans ce chapitre au couplage d'une nanosource optique dans une fibre optique. Cette configuration doit permettre d'obtenir une source de photon unique fibrée assurant une manipulation aisée du signal et réalisable techniquement.

Plusieurs travaux récents tant théoriques qu'expérimentaux traitent de configurations similaires : nano-antenne déposée à l'extrémité d'une fibre [110, 111], couplage d'un nanofil plasmonique à une fibre optique [69, 103]. Cependant, ces configurations sont assez délicates à fabriquer. Nous étudions ici une configuration simple, représentée sur la figure 5.1 (réciproque de la configuration du chapitre précédent).



FIGURE 5.1 – Couplage de l'émission dipolaire à un mode de fibre. Simulation de l'amplitude du champ magnétique H_{ϕ} (a.u.).

L'optimisation de la géométrie permet d'améliorer le transfert d'énergie de la nanosource au mode propagatif de la fibre. En étudiant l'influence de paramètres tels que l'angle de la partie étirée, l'épaisseur d'or et le diamètre de fibre en sortie, nous montrerons qu'il est possible de récupérer par cette structure simple jusqu'à près de 50% de l'émission de fluorescence dans la fibre optique nue.

5.1 Modélisation par FEM

5.1.1 Présentation du dispositif

Schéma de principe

Le dispositif étudié réalisant une nanosource fibrée est représenté ci-dessous (cf. fig. 5.2). Il est composé d'un dipôle situé à une distance d d'une fibre étirée et métallisée sur une épaisseur e. Le rayon de courbure de l'extrémité de la partie métallisée est noté R_m et celui de la fibre R_F , le demi-angle de la partie conique est noté α . La partie conique devient cylindrique pour un rayon R_0 où la fibre est nue.



FIGURE 5.2 – Principe d'une nanosource fibrée

Modélisation de l'émetteur dipolaire

On se limite au cas d'un émetteur dipolaire orienté le long de l'axe de symétrie (Oz) du système. Cette configuration est la plus favorable au couplage puisque le champ électrique est longitudinal à l'extrémité de la pointe [37]. On peut alors profiter de la forte symétrie du problème pour utiliser une méthode de résolution numérique axi-symétrique. L'émetteur dipolaire est modélisé par une spire parcourue par un courant dit magnétique. Cette modélisation est issue de l'analogie avec un dipôle magnétique qui peut être modélisé par une spire parcourue par un courant électrique I_e [112]. Le tableau 5.1 précise les grandeurs physiques analogues.

Il faut souligner ici que cette analogie est un artifice mathématique qui permet de modéliser le dipôle électrique par une spire, géométrie adaptée à la symétrie de révolution du problème. Le moment dipolaire p_0 équivalent à une spire de rayon r parcourue par un courant I_m est alors donné par [113] :

$$p_0 = \varepsilon_0 \varepsilon_r \pi r^2 \mathbf{I}_m \tag{5.1}$$

où ε_r est la permittivité relative du milieu environnant la spire.



TABLE 5.1 – Grandeurs analogues entre dipôle électrique et magnétique.

Dans le vide, la puissance rayonnée par un dipôle de moment dipolaire p_0 oscillant à la pulsation ω est donnée par

$$P_0 = \frac{\mu_0 p_0^2 \omega^4}{12\pi c}$$
(5.2)

On en déduit l'expression du courant magnétique en fonction de la puissance d'émission :

$$I_m = \sqrt{\frac{3P_0}{4\pi\varepsilon_0 c}} \left(\frac{\lambda}{r}\right)^2 \tag{5.3}$$

Le courant dans la spire est donc maintenue à cette valeur pour laquelle $P_0 = 1$ W, les dépendances temporelles en $e^{i\omega t}$ sont omises pour une lecture plus aisée. La valeur particulière du courant permet d'obtenir directement les puissances normalisées par rapport à une émission dans le vide (P/P₀). Cette formulation permettra de faire le lien avec les taux de fluorescence normalisés de la même façon dans le reste du manuscrit (Γ/Γ_0). Le rayon de la spire a été choisi à r = 0, 1 nm pour modéliser au mieux un émetteur ponctuel comme une molécule fluorescence. La valeur de la puissance émise par ce dispositif est vérifiée dans l'annexe D.1, l'erreur relative est inférieure à 1%.

Méthode des éléments finis

Le maillage du logiciel Comsol est choisi sous la dénomination « extrêmement fin » pour utiliser au mieux la capacité du centre du calcul. Le maillage comprend alors 12 553 éléments de taille minimale 0, 1 nm et maximale 62 nm.

Pour simuler un milieu infini, des couches absorbantes (PML) pour des ondes cylindriques ont été placées sur le pourtour de la zone d'étude (cf. fig 5.3). Leur épaisseur a été choisie à 400 nm et distante de 600 nm de la partie fibre. La longueur de la partie fibre nue vaut $L = 2 \ \mu m$. Cette distance a été réduite afin de conserver une fenêtre de calcul de dimensions raisonnables tout en permettant de caractériser la propagation dans la partie fibrée (cf. 5.2.1).



FIGURE 5.3 – Présentation du maillage défini par le logiciel Comsol.

5.1.2 Bilan énergétique

Emission dipolaire totale

En régime stationnaire, la puissance émise par un dipôle dépend de son environnement. L'intégration du vecteur de Poynting Π sortant d'un cylindre (de rayon R = 1 nm et de hauteur L = 2R) au centre duquel est située la spire permet de déterminer la puissance dipolaire émise (cf. fig 5.4) :

$$\mathbb{P}_{dipole} = \oint\limits_{cylindre} < \Pi > . \mathbf{dS}$$

La puissance émise par un dipôle dépend principalement de sa distance à la fibre et très peu de l'épaisseur d'or. À proximité de la fibre métallisée, la puissance émise augmente significativement. Le comportement est donc analogue à celui d'un dipôle à proximité d'un nanofil étudié au chapitre 2 et peut s'expliquer par l'augmentation du transfert d'énergie à proximité de la fibre. Rappelons que le taux de fluorescence Γ_{tot} se déduit facilement de l'émission dipolaire selon l'égalité

$$\frac{\Gamma_{tot}}{\Gamma_0} = \frac{P_{dipole}}{P_0} \tag{5.4}$$

où Γ_0 est le taux de fluorescence dans le vide. Cette relation nous permet de déterminer les différents canaux de relaxation de l'émission de fluorescence à partir d'un simple calcul classique d'émission dipolaire.



FIGURE 5.4 – Puissance dipolaire émise à proximité d'une fibre métallique étirée (épaisseur d'or de 30 nm, demi-angle $\alpha = 20^{\circ}$), longueur d'onde d'émission $\lambda = 800$ nm.

Puissance couplée dans la fibre

La puissance récupérée dans la fibre est donnée par l'intégrale du vecteur de Poynting sur une section transverse de la fibre (cf. fig. 5.5). L'invariance par symétrie du système permet de simplifier cette intégrale double en intégrale simple en fonction du rayon :

$$P_{fibre} = \iint_{A_{\infty}} < \mathbf{\Pi} > .\mathbf{dS} \approx \int_{0}^{h} < \mathbf{\Pi} > .\widehat{z}2\pi r \mathrm{d}r$$
(5.5)

où L est la taille de la fenêtre numérique. La fenêtre est choisie suffisamment large pour contenir le mode guidé tout en restant de dimensions compatibles avec les capacités du centre de calcul. En effet, pour L = 1,2 μ m, nous vérifions que l'intégrale analytique du mode normé TM₀₁ obtenu par résolution directe de la relation de dispersion pour une fibre de même diamètre (cf. chapitre 2) est de 0,993 au lieu de 1.

La puissance dans la fibre est représentée sur la figure 5.5 ci-dessous. Elle présente les mêmes variations que la puissance dipolaire totale émise en raison du couplage de l'émetteur au guide. Il reste donc à expliquer l'évolution du couplage entre l'émetteur et le mode plasmon ainsi que l'influence des pertes dans la partie métallique.

Perte Joule

Nous pouvons évaluer les pertes métalliques en intégrant la puissance volumique cédée aux porteurs de charges dans la partie métallique :

$$P_{Joule} = \frac{1}{2} \left| \iint \boldsymbol{j} \cdot \mathbf{E}^* dV \right|$$
(5.6)

Ces pertes augmentent considérablement lorsque le dipôle est à proximité de la fibre comme en témoigne la figure 5.6.

Les différents modes d'absorption métallique ont été discutés plus détail dans le chapitre 2. Les canaux envisagés sont :

- l'absorption lors de la réflexion sur le métal (négligeable);
- l'absorption lors de la propagation du plasmon (principale contribution à grande distance);



FIGURE 5.5 – Puissance transmise dans une fibre optique de rayon $R_0 = 400$ nm à partir d'un dipôle situé à une distance d de l'extrémité. L'épaisseur d'or est e = 30 nm, la longueur d'onde d'émission est $\lambda = 800$ nm.



FIGURE 5.6 – Puissance dissipée dans la partie métallique. L'épaisseur d'or est e = 30 nm, longueur d'onde d'émission $\lambda = 800$ nm.

- l'absorption par diffusion d'électron.

La diffusion d'électron est la contribution majeure des pertes lorsque le dipôle se rapproche de la fibre. On peut estimer cette part en limitant le domaine d'intégration à l'extrémité de la pointe [113]. Elle varie en $1/d^3$ et devient négligeable pour des distances au delà de quelques nm. Ce transfert d'énergie est responsable de l'inhibition de fluorescence à courte distance.

5.1.3 Rendement énergétique

L'efficacité de couplage noté η est définie comme le rapport entre la puissance présente dans la fibre et celle émise par le dipôle :

$$\eta = \frac{\mathbf{P}_{fibre}}{\mathbf{P}_{dipole}} \tag{5.7}$$

Ce rendement présenté sur la figure 5.7 est maximum lorsque le dipôle est situé à une distance proche de 40 nm. En effet, lorsque le dipôle est proche de la fibre, les pertes ohmiques sont importantes (cf. fig. 5.6) et lorsque le dipôle est plus éloigné, le couplage au plasmon est moins efficace.



FIGURE 5.7 – Rendement énergétique présente dans une fibre ($R_0 = 400 \text{ nm}$). L'épaisseur d'or est e = 30 nm, longueur d'onde d'émission $\lambda = 800 \text{ nm}$.

5.1.4 Facteur β

Projection dans le mode de fibre

La puissance électromagnétique présente dans la fibre n'est pas forcément celle du mode TM_{01} recherché. En effet, à l'arrêt brutal de la métallisation, une partie de la puissance présente dans le mode plasmon se répartit dans le mode guidé TM_{01} mais aussi dans d'autres modes (cf. 5.2.1) par diffraction. Afin de déterminer la puissance réellement récupérée dans le mode TM_{01} de la fibre, on projette le champ issu de la simulation Comsol sur le mode guidé calculé analytiquement :

$$P_{TM_{01}} = \left| \frac{1}{2} \iint_{0}^{L} (\mathbf{E}_{r}^{C} \wedge \boldsymbol{h}) . \hat{z} 2\pi r dr \right|^{2}$$
(5.8)

où E_r^C est le champ électrique radial issu de la simulation numérique est h et le champ du mode TM_{01} de la fibre nue (cf. chapitre 2). L'allure des champs obtenus est représentée cidessous (cf. fig 5.8), le champ dit analytique est obtenu par la résolution de la relation de dispersion. Il est ensuite normalisé par rapport au champ issu de la simulation numérique Comsol. Après propagation dans la fibre étirée, on vérifie que le champ électrique est très proche du mode guidé TM_{01} . L'intégrale de recouvrement entre les modes vaut alors dans le meilleur des cas 99%.



FIGURE 5.8 – Profil des champs pour le mode TM_{01} dans une fibre ($R_0 = 400 \text{ nm}$) après propagation sur une distance $L = 2 \mu \text{m}$. L'angle d'ouverture est de 20°, le dipôle à d = 30 nm, l'épaisseur d'or est de e = 30 m.

5.1.5 Distinction : rendement énergétique, facteur β

Le facteur β est donc défini comme la puissance récupérée dans le mode TM_{01} par rapport à la puissance dipolaire émise :

$$\beta = \frac{P_{\rm TM_{01}}}{P_{dipole}} \tag{5.9}$$

Ce facteur est décomposé comme la projection sur le mode TM_{01} du champ calculé dans la fibre et le rendement énergétique (η) défini plus haut :

$$\beta = \frac{P_{TM_{01}}}{P_{fibre}} \frac{P_{fibre}}{P_{dipole}} = \frac{P_{TM_{01}}}{P_{fibre}} \times \eta$$
(5.10)

On vérifie ainsi que le mode qui se propage dans la fibre est très proche du mode guidé. Pour un rayon de fibre de $R_0 = 400$ nm, la fraction émise dans le mode de fibre est de $P_{TM_{01}}/P_{fibre} = 99\%$ dans le cas le plus favorable. Il diminue très rapidement lorsque le rayon de la fibre augmente $R_0 = 600$ nm, ce rapport tombe à 35% en raison d'un couplage à d'autres modes.

5.2 Optimisation de la géométrie

5.2.1 Rayon de sortie

Le taux de couplage dans le mode TM_{01} de la fibre nue dépend fortement du rayon R_0 . Pour illustrer ce phénomène, la densité d'énergie w_{el} est évaluée au centre de la fibre et est représentée en fonction de la distance z à la partie métallisée (cf. fig 5.9). Le mode TM_{01} présentant un maximum d'intensité au centre de la fibre, la densité d'énergie est donc une représentation de l'énergie dans ce mode.



FIGURE 5.9 – Densité d'énergie au centre de la fibre pour 3 rayon R₀ différents. L'angle du taper est de 20°, l'épaisseur d'or vaut e = 30 nm, la longueur d'onde d'émission est $\lambda = 800$ nm.

On remarque que pour des rayons de fibre nue supérieure à $R_0 = 400$ nm, la densité d'énergie au centre présente des oscillations amorties caractéristiques d'un couplage avec un mode à fuites, vraisemblablement le mode TM_{02} de la fibre nue (cf. fig. 5.10). Pour $R_0 = 600$ nm, les oscillations ne sont toujours pas amorties pour $z = 10 \ \mu$ m car le mode TM_{02} présente sans doute moins de fuite.



FIGURE 5.10 – Relation de dispersion pour une fibre nue ou métallisée.

Le rendement énergétique est moyenné pour deux sections différentes le long de la fibre afin de minimiser l'effet des oscillations dues au couplage. La moyenne de ces rendements énergétiques est représentée fig. 5.11. On remarque ainsi que le couplage à des modes à pertes diminue drastiquement le rendement énergétique. Il convient donc de limiter la métallisation au delà de 460 nm pour éviter le couplage aux modes à fuites de la partie métallisée ainsi qu'un bon recouvrement sur le mode TM_{01} de la fibre.



FIGURE 5.11 – Rendement énergétique pour différents rayons de fibre nue. L'angle du taper est de 20°, l'épaisseur d'or vaut e = 30 nm, la longueur d'onde d'émission est $\lambda = 800$ nm.

5.2.2 Effet de l'angle

En faisant varier l'angle de la partie étirée, on constate que l'efficacité de couplage présente un maximum lorsque l'angle avoisine les 10° (cf. fig. 5.12). Si les angles sont trop faibles, la longueur de la partie métallique est importante et les pertes lors de la propagation du plasmon augmentent. Le rendement final est alors déprécié. Ceci est confirmé par la forte augmentation des pertes Joule aux petits angles (courbe en pointillé fig. 5.12). Pour des grands angles, l'efficacité diminue car le transfert d'énergie entre le mode plasmon (externe) et le mode de fibre ne se fait pas de façon adiabatique.



FIGURE 5.12 – Transfert d'énergie dans la fibre et la énergie dissipée en fonction de l'angle de la partie étirée et métallisée. Le dipole est situé à d = 30 nm du guide, l'épaisseur d'or vaut e = 30 nm, la longueur d'onde d'émission est $\lambda = 800$ nm.

5.2.3 Effet de l'épaisseur d'or

Rendement énergétique

L'énergie présente dans la fibre est tracée pour différentes valeurs de l'épaisseur d'or e (cf. fig. 5.13). Cette énergie est normalisée par rapport à la puissance émise par le dipole.



FIGURE 5.13 – Rendement énergétique dans la fibre en fonction de l'épaisseur d'or e. Le dipole est situé à d = 30 nm du guide, l'angle de la partie étirée vaut $\alpha = 10^{\circ}$, la longueur d'onde d'émission est $\lambda = 800$ nm.

On remarque la présence d'un maximum pour e = 30 nm. Ce phénomène dépend de la longueur de propagation d'un mode plasmon en fonction de l'épaisseur de métal et de la distance de pénétration du champ dans la partie métallique.

Pour une fibre métallisée, il est possible de déterminer l'indice effectif du mode en fonction de l'épaisseur d'or pour un rayon extérieur fixé (cf. chapitre 4). Sur la figure suivante (fig. 5.14) est tracée la partie réelle de l'indice effectif ainsi que la longueur de propagation du plasmon.



FIGURE 5.14 – Partie réelle de l'indice plasmon TM_{01} et sa longueur de propagation pour une fibre métallisée de rayon R = 300 nm en fonction de l'épaisseur d'or *e*.

La longueur de propagation est plus importante pour une épaisseur de métal importante et chute fortement avec lorsque celle-ci diminue. Le rendement énergétique global est donc favorisé par une métallisation conséquente.

L'épaisseur de pénétration de l'onde dans le métal (notée δ) peut être associée à la grandeur $1/\kappa$ où $\kappa = \sqrt{\beta^2 - \varepsilon_1 k_0^2}$. On peut alors comparer cette épaisseur de peau à l'épaisseur de métal (cf. fig. 5.15). On remarque que dès que l'épaisseur de métal dépasse 25 nm, l'épaisseur de peau est inférieure à l'épaisseur de métal ce qui impose que le mode plasmon externe TM₀₁ aura plus de difficulté à se coupler au mode interne TM₀₂.



FIGURE 5.15 – Rapport entre l'épaisseur de peau et l'épaisseur du métal en fonction de cette dernière pour une fibre métallisée de rayon extérieure R = 300 nm.

Ainsi, il faut trouver un compromis entre une longueur de propagation suffisante pour atteindre la partie fibre nue (épaisseur d'or importante) et un bon couplage entre le plasmon externe et interne (faible épaisseur d'or). Ceci explique la valeur optimale observée autour de $e \sim 30$ nm sur la figure fig. 5.13.

5.2.4 Optimisation de la forme

En utilisant les résultats précédents, il est possible de définir le rendement énergétique dans le mode de fibre pour différentes valeurs de l'angle et de l'épaisseur d'or. La carte ainsi obtenue est représentée fig. 5.16.



FIGURE 5.16 – Rendement énergétique dans la fibre en fonction de l'épaisseur d'or e et de l'angle d'ouverture de la partie conique. Le dipole est situé à d = 30 nm du guide, la longueur d'onde d'émission est $\lambda = 800$ nm.

Nous avons expliqué que la dépendance du rendement en fonction de l'angle présente un maximum en raison de pertes lors de la propagation pour des angles faibles et à un mauvais couplage entre les modes pour les angles élevés. Le rendement présente également un maximum en fonction de l'épaisseur d'or puisque des épaisseurs faibles détériorent la longueur de propagation du plasmon et des épaisseurs importantes nuisent au couplage entre les modes. Le rendement énergétique est alors optimal pour une géométrie particulière : pour un angle proche de $\alpha = 10^{\circ}$ et une épaisseur d'or de e = 30 nm, le rendement énergétique approche 45%. De plus, la projection dans le mode de fibre vaut 99%

5.2.5 Portée du dispositif

Nous avons représenté sur la figure ci-dessous (fig. 5.17.a) le rendement énergétique en fonction de l'épaisseur d'or (e) et de la distance du dipole au guide (d). L'angle d'ouverture est alors optimisé à $\alpha = 10^{\circ}$. On observe ainsi une disposition optimale pour laquelle le dipole est à d = 40 nm de l'extrémité du guide.

Afin d'évaluer la portée du dispositif, nous avons représenté le rendement énergétique (fig.5.17.a) pour la configuration optimale à cette longueur d'onde (e = 30 nm et $\alpha = 10^{\circ}$). On observe ainsi une portée relativement importante puisqu'un dipole entre 10 nm et 90 nm émet plus de 40% d'énergie dans la fibre optique.

Finalement, la même étude menée sur une fibre étirée métallisée avec de l'argent conduit à une efficacité de couplage de 58% (et supérieure à 50% pour 10 nm < d < 75 nm) dans la configuration optimisée réalisable aussi expérimentalement ($\alpha = 15^{\circ}$ et e = 15 nm). Ceci démontre ainsi l'efficacité de cette configuration.



FIGURE 5.17 – a) Rendement énergétique dans la fibre en fonction de l'épaisseur d'or e et de la distance du dipole à l'extrémité de la fibre. L'angle d'ouverture est de $\alpha = 10^{\circ}$, la longueur d'onde d'émission est $\lambda = 800$ nm. (b) Coupe selon la ligne pointillée montrant la portée du dispositif.

5.3 Jonction pointe-surface

5.3.1 Géométrie et comportement

L'étude précédente porte sur un émetteur libre à proximité de la sonde plasmonique. Cette configuration peut correspondre, par exemple, à une nanoparticule piégée optiquement en sortie de fibre. Il est également utile de s'intéresser au comportement du système dans le cas où l'émetteur est déposée sur un substrat (cf. fig. 5.18.a). Si ce dernier est d'indice supérieur à celui du milieu dans lequel baigne la fibre, l'émission de lumière de la nanosource s'effectuera principalement dans le substrat (cf. fig. 5.18.b).



FIGURE 5.18 – Modèle d'une pointe en face d'une nanosource déposée sur un substrat (a). Champ magnétique simulé d'un dipole déposé sur un substrat à $D_{substrat} = 500$ nm d'une fibre étirée et métalisée. $\lambda = 800$ nm, e = 15 nm, $\alpha = 15^{\circ}$ (b).

5.3.2 Modélisation

Pour une molécule déposée à 1 nm d'un substrat de permittivité $\varepsilon_{substrat} = 2, 25$. Nous avons déterminé le facteur β défini comme le rapport entre l'énergie obtenue dans le mode TM₀₁ de la fibre et l'énergie émise par la nanosource. La fibre est recouverte d'un film d'argent présentant de plus faibles pertes que de l'or. Dans ce cas, l'optimisation de la géométrie conduit à une épaisseur de e = 15 nm et un angle de $\alpha = 15^{\circ}$. Pour cette configuration, le facteur β est représenté fig. 5.19.



FIGURE 5.19 – Facteur β pour une fibre optique recouverte d'un film d'argent d'épaisseur e = 15 nm et un angle de $\alpha = 15^{\circ}$ (a). La longueur d'onde d'émission est $\lambda = 800$ nm. Simulation du champ magnétique dans la configuration optimale (b).

Le comportement est très similaire avec et sans substrat et le couplage à la fibre n'est que faiblement dégradé par la présence du substrat. Le couplage optimal passe alors de 58% (sans substrat) à 50% (avec substrat). Ce résultat remarquable est permis grâce au plasmon qui couple très efficacement l'émission dans la fibre alors que le substrat, dense optiquement, constitue normalement le canal de relaxation privilégié.

5.4 Conclusion

La configuration étudiée dans ce chapitre est relativement simple à réaliser expérimentalement [114]. L'optimisation de la géométrie d'une telle sonde repose sur la minimisation des pertes Joule dans le métal et un transfert efficace du mode plasmon externe vers un mode de fibre. Pour de l'or la configuration optimale consiste en une fibre optique étirée avec un angle de 10° et métallisée sur une épaisseur de 30 nm.

Il est alors possible de récupérer la moitié de l'énergie lumineuse émise par un émetteur déposé sur un substrat. La portée de ce dispositif (entre 10 et 90 nm) permet d'envisager une réalisation expérimentale qui ne serait pas trop contrainte. La fabrication d'une pointe plasmonique fait l'objet du stage de Master 1 de Florent Behague (avril-juin 2015).

Ainsi, ce dispositif doit permettre de réaliser une sonde de microscopie optique en champ proche efficace. Elle devrait également permettre de réaliser une source de photon unique fibrée.

Chapitre 6

Conclusion générale et perspectives

Le travail de thèse présenté dans ce manuscrit concerne principalement l'étude du couplage entre un émetteur dipolaire et une structure guidante plasmonique.

En utilisant le formalisme de Green, nous avons réussi à identifier les différents canaux de relaxation d'un émetteur en présence d'un guide plasmonique de forme quelconque. Il est désormais possible de distinguer les taux de couplage radiatif, non-radiatif et plasmonique ainsi que de connaître l'influence de la dissipation dans le métal. Ces connaissances ont permis d'identifier un maximum de couplage résultant principalement d'un compromis entre le couplage de la nanosource au mode plasmonique et de la diffusion électronique qui augmentent toutes deux lorsque l'émetteur se rapproche du métal.

En vue d'améliorer le couplage, nous avons étudié le couplage aux modes plasmons « lents » (régime quasi-statique). Nous avons alors mis en évidence que l'émission lumineuse d'un dipole correspondant à la longueur d'onde du régime quasi-statique du guide ne permettait pas une utilisation expérimentale du mode plasmonique en raison de trop fortes pertes Joule. En revanche, dans le proche infra-rouge, des guides de très faible taille (~ 10 nm) permettent d'obtenir un bon couplage dans le mode plasmonique tout en limitant les pertes lors de la propagation du plasmon.

Par la suite, nous nous sommes intéressés à la description de la propagation lumineuse le long d'une fibre optique métallisée et étirée. Cette configuration doit permettre un bon compromis entre le couplage de la source avec le mode plasmonique et une longueur de propagation utilisable expérimentalement en vue d'une détection. Nous avons alors mis en évidence les principales propriétés de ces modes en fonction de l'épaisseur de métal et de la longueur d'onde. Il apparaît deux régimes dit de couplage faible et de couplage fort qui permettent de comprendre le passage entre un mode plasmonique externe utilisé pour la détection de la nanosource et des modes de fibres assurant la propagation. Cette étude analytique a aussi servi comme référence pour mettre en place une simulation numérique par la méthode des éléments finis.

Pour une structure plus réaliste comprenant une fibre étirée, nue puis métallisée, nous avons alors montré que les choix de l'angle formé par la partie étirée, l'épaisseur de métallisation ainsi que le départ de métallisation étaient cruciaux pour optimiser le couplage. Nous avons alors montré que dans la configuration la plus favorable, il était possible de récupérer plus de 50% de l'énergie lumineuse émise par un émetteur dipolaire déposé sur

un substrat.

Les deux configurations relativement simples explorées dans ce mémoire de thèse sont réalisables assez facilement et permettent d'explorer des phénomènes originaux. Par exemple, la fibre plasmonique peut constituer une sonde de champ proche optique simple et efficace pour la caractérisation de composants nanophotoniques. Réciproquement, cela permettrait de réaliser une source de photons uniques fibrée découlant sur une grande variété d'études à l'échelle du photon unique dans le visible et de manière très contrôlée. Par ailleurs, le couplage d'une ou deux nanosource(s) à un nanofil plasmonique permet de transposer à des échelles mésoscopiques des phénomènes nanoscopiques (RET longue portée) ou microscopiques (transistor à photon unique, porte logique nano-optique).

Enfin, un important travail pour transposer à la plasmonique les concepts de la cQED est en cours (thèse de Benjamin Rousseaux) et devrait déboucher sur la conception de composants nanophotoniques originaux dans le continuité de cette thèse.

Annexe \mathcal{A}

Méthode du tenseur de Green

A.1 Solveur de mode pour des guides 2D

La méthode du tenseur de Green 3D est utilisée pour décrire le guidage plasmonique pour des structures aux géométries variées [115, 116, 117, 118]. Nous discutons ici une méthode différente reposant sur l'évaluation du tenseur de Green 2D afin d'obtenir le mode 3D se propageant dans le guide plasmonique [75].

En effet, l'évaluation de la densité de mode guidé (DOS) permet de caractériser un guide plasmonique ou photonique [68, 119].

La densité d'état photonique (DOS) noté $\rho^{2D}(k_y, \omega)$ est le nombre de mode supporté par une structure guidante dans l'intervalle infinitésimal $[k_y; k_y + dk_y]$ pour une fréquence donnée ω . Son évaluation numérique est possible grâce au formalisme du tenseur de Green [75].

Le tenseur de Green 2D du guide contient toutes les propriétés électromagnétiques du système. \mathbf{G}^{2D} permet de définir le champ électrique en tout point $\mathbf{r}_{//} = (x, z)$ d'une section du guide excité par une ligne infinitésimale de courant \mathbf{J}_0 situé en $\mathbf{r}_{//}^0$:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}_{//}) = i\omega\mu_0 \mathbf{G}^{\mathrm{2D}}(\mathbf{r}_{//}, \mathbf{r}_{//}^0) \cdot \mathbf{J}_0 .$$
(A.1)

 \mathbf{G}^{2D} est alors un tenseur de rang 3 et doit être évalué pour chaque couple de positions $(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^0)$ à l'intérieur du système. Il peut être obtenu en résolvant l'équation autocohérente de Dyson

$$\mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{0}) = \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{0}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{0}) + k_{0}^{2} \int_{waveguide} d\boldsymbol{r}_{//}^{\prime} \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{0}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{\prime}) \Delta \varepsilon \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{0}) \quad (A.2)$$

où $\Delta \varepsilon = (\varepsilon_{\rm B} - \varepsilon)$ est la différence de permittivité entre le milieu environnant et le guide[120, 121] et \mathbf{G}^{2D}_{0} est le tenseur de Green du milieu en l'absence de guide. L'intégrale numérique est réalisée en discrétisant l'objet en N éléments de surface S_k .

$$\mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{0}) = \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{0}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{0}) + k_{0}^{2} \sum_{k=1,\dots,N} \int_{\mathbf{S}_{k}} d\boldsymbol{r}_{//}^{\prime} \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{0}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{\prime}) \Delta \varepsilon \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{0}) \,.$$
(A.3)

Selon la forme de l'objet, différents pavages peuvent être utilisés. En général, des cellules à base carrée de dimensions très inférieures à la longueur d'onde sont utilisés où le tenseur de Green est supposé constant. L'équation précédente est alors simplifiée et donne :

$$\mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\mathbf{r}_{//},\mathbf{r}_{//}^{0}) = \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{0}(\mathbf{r}_{//},\mathbf{r}_{//}^{0}) + k_{0}^{2} \sum_{k=1,\dots,\mathrm{N}} \mathrm{S}_{k} \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{0}(\mathbf{r}_{//},\mathbf{r}_{//}^{k}) \Delta \varepsilon \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\mathbf{r}_{//}^{k},\mathbf{r}_{//}^{0}), \quad (\mathrm{A.4})$$

où $\mathbf{r}_{//}^k$ est le centre du $k^{\rm e}$ pavage. Cependant, lorsque le champ varie sur les dimensions d'une cellule, le tenseur de Green ne peut alors être considéré constant sur un tel pavage. L'équation A.3 est alors réécrite sous la forme suivante

$$\mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{0}) = \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_{0}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{0}) + k_{0}^{2} \sum_{k} \mathbf{G}_{0}^{int}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{k}) \Delta \varepsilon \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}(\boldsymbol{r}_{//}^{k}, \boldsymbol{r}_{//}^{0}) , \quad (A.5)$$

avec
$$\mathbf{G}_{0}^{int}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{k}) = \int_{\mathbf{S}_{k}} d\boldsymbol{r}_{//}^{2\mathbf{D}} \mathbf{G}_{0}^{2\mathbf{D}}(\boldsymbol{r}_{//}, \boldsymbol{r}_{//}^{\prime})$$
 (A.6)

Pour un milieu homogène, (ref. [122]), l'intégrale de surface $\mathbf{G}_0^{int}(\mathbf{r}_{//}, \mathbf{r}_{//}^k)$ (Eq. A.6) peut être transformée en intégrale de contour grâce au théorème de Green. Cette astuce réduit agréablement le temps de calcul de ces intégrales. De plus, la divergence du tenseur de Green au point source [123] est prise en compte [122]. Dans sa forme finale, l'équation de Dyson (Eq. A.5), est résolu numériquement en utilisant les techniques usuelles d'inversion de matrices. Dans ce but, elle est réécrite sous la forme suivante :

$$\mathbf{G}^{2\mathrm{D}} = [\mathbf{I} - \mathbf{G}_0^{int} k_0^2 \Delta \varepsilon]^{-1} \cdot \mathbf{G}^{2\mathrm{D}}_0 \tag{A.7}$$

où \mathbf{I} est la matrice unité de rang 3N.

Ainsi, grâce à ce calcul précis du tenseur de Green, toutes les caractéristiques électromagnétiques du système sont disponibles. En particulier, pour les phénomènes de diffusion, la densité de mode s'écrit [75, 124, 125, 126, 127, 128, 129] :

$$\rho^{\rm 2D}(k_y) = -\frac{2k_y}{\pi} \operatorname{Im} \operatorname{Tr} \left[\varepsilon \mathbf{G}^{\rm 2D}(k_y) \right] = \frac{d}{dk_y} \left\{ \frac{1}{\pi} \operatorname{Im} \ln \left[\det \varepsilon \mathbf{G}^{\rm 2D}(k_y) \right] \right\}, \quad (A.8)$$

où Im est la partie imaginaire, ln la fonction logarithme, Tr la trace de la matrice et det son déterminant.

Il faut noter que cette expression n'est valable que dans des régions où la permittivité ε ne change pas de signe. Par ailleurs, on y trouve également les contributions des modes guidés et le continuum de modes radiatifs du milieu homogène. Afin de n'obtenir que les modes guidés, on utilise l'équation de Dyson A.7 dans l'expression de la DOS (A.8) pour avoir

$$\rho^{\rm 2D}(k_y) = -\frac{1}{\pi} \operatorname{Im} \frac{d}{dk_y} \ln \det \left[\mathbf{I} - \mathbf{G}_0^{int} k_0^2 \Delta \varepsilon \right] + \frac{1}{\pi} \operatorname{Im} \frac{d}{dk_y} \ln \left[\det \varepsilon \mathbf{G}^{\rm 2D}_0(k_y) \right] , \qquad (A.9)$$

La densité de modes guidés découle alors simplement de l'équation suivante :

$$\Delta \rho^{\rm 2D}(k_y) = \rho^{\rm 2D}(k_y) - \rho^{\rm 2D}_{0}(k_y) = -\frac{1}{\pi} \operatorname{Im} \frac{d}{dk_y} \ln \det \left[\mathbf{I} - \mathbf{G}_0^{int} k_0^2 \Delta \varepsilon \right] , \qquad (A.10)$$

où ρ_0^{2D} est la DOS du milieu homogène.

A.2 Condition de résonance

Le champ électrique en présence d'une on de incidente \mathbf{E}_0 suit l'équation de Lippman-Schwinger

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 + \mathbf{G}_0^{int} k_0^2 \Delta \varepsilon \mathbf{E} , \qquad (A.11)$$

ainsi
$$[\mathbf{I} - \mathbf{G}_0^{int} k_0^2 \Delta \varepsilon] \mathbf{E} = \mathbf{E}_0.$$
 (A.12)

Le système supporte un mode en l'absence d'excitation si et seulement si la condition de résonance suivante est satisfaite :

$$det[\mathbf{I} - \mathbf{G}_0^{int} k_0^2 \Delta \varepsilon] = 0.$$
(A.13)

A.3 Expression de G_0^{int} pour une section rectangulaire

On se propose d'exprimer l'intégrale de surface \mathbf{G}_0^{int} (Eq. A.6) du tenseur de Green 2D sur un cylindre de largeur 2*a* et de hauteur 2*b*. La démonstration présente dans [122] utilise le théorème de Green et l'intégrale de surface sur un rectangle (Eq. A.6) est simplifiée en intégrale de contour sur le périmètre de celui-ci. Dans la ref. [122], les auteurs n'ont considéré que le cas $k_y = 0$ mais sa généralisation à $k_y \neq 0$ est immédiate. On obtient alors

$$k_0^2 \mathbf{G}_0^{int}(\mathbf{r}_{//}, \mathbf{r}_{//}^k) =$$
(A.14)

$$\begin{bmatrix} -\frac{k_0^2}{k_r^2}\mathbf{D} + \frac{k_y}{\varepsilon_{\mathbf{B}}k_r^2}\nu_{xx} + \frac{k_0^2}{k_r^2}\nu_{zz} & -i\frac{k_y}{\varepsilon_{\mathbf{B}}}l_x & -\frac{1}{\varepsilon_{\mathbf{B}}}\nu_{xz} \\ -i\frac{k_y}{\varepsilon_{\mathbf{B}}}l_x & -\frac{1}{\varepsilon_{\mathbf{B}}}\mathbf{D} + \frac{1}{\varepsilon_{\mathbf{B}}}(\nu_{xx} + \nu_{zz}) & -i\frac{k_y}{\varepsilon_{\mathbf{B}}}l_z \\ -\frac{1}{\varepsilon_{\mathbf{B}}}\nu_{xz} & -i\frac{k_y}{\varepsilon_{\mathbf{B}}}l_z & -\frac{k_0^2}{k_r^2}\mathbf{D} + \frac{k_0^2}{k_r^2}\nu_{xx} + \frac{k_y}{\varepsilon_{\mathbf{B}}k_r^2}\nu_{zz} \end{bmatrix}$$

où D = 1 si $\boldsymbol{r}_{//}^k = \boldsymbol{r}_{//}$ et nul sinon. Les autres valeurs sont

$$\begin{split} l_x(\mathbf{r}_{//}, \mathbf{r}_{//}^k) &= \frac{i}{4} \int_{z_k-b}^{z_k+b} dz_0 \left[\mathbf{H}_0^{(1)}(k_{\mathrm{B}}\rho_{x1}^{2\mathrm{D}}) - \mathbf{H}_0^{(1)}(k_{\mathrm{B}}\rho_{x2}^{2\mathrm{D}}) \right] ,\\ l_z(\mathbf{r}_{//}, \mathbf{r}_{//}^k) &= \frac{i}{4} \int_{x_k-b}^{x_k+b} dx_0 \left[\mathbf{H}_0^{(1)}(k_{\mathrm{B}}\rho_{z1}^{2\mathrm{D}}) - \mathbf{H}_0^{(1)}(k_{\mathrm{B}}\rho_{z2}^{2\mathrm{D}}) \right] ,\\ avec\\ \rho_{x1}^{2\mathrm{D}} &= \sqrt{(x-x_k-a)^2 + (z-z_0)^2} ,\\ \rho_{x2}^{2\mathrm{D}} &= \sqrt{(x-x_k+a)^2 + (z-z_0)^2} ,\\ \rho_{z1}^{2\mathrm{D}} &= \sqrt{(z-z_k-b)^2 + (x-x_0)^2} ,\\ \rho_{z2}^{2\mathrm{D}} &= \sqrt{(z-z_k+b)^2 + (x-x_0)^2} , \end{split}$$

 et

Université de Bourgogne

$$\begin{split} \nu_{xx}(\mathbf{r}_{//},\mathbf{r}_{//}^{k}) &= -i\frac{k_{\rm B}}{4}\int_{z_{k}-b}^{z_{k}+b}dz_{0}\left[\frac{(x-x_{k}-a)\mathrm{H}_{1}^{(1)}(k_{\rm B}\rho_{x1}^{2\mathrm{D}})}{\rho_{x1}^{2\mathrm{D}}} - \frac{(x-x_{k}+a)\mathrm{H}_{1}^{(1)}(k_{\rm B}\rho_{x2}^{2\mathrm{D}})}{\rho_{x2}^{2\mathrm{D}}}\right],\\ \nu_{zz}(\mathbf{r}_{//},\mathbf{r}_{//}^{k}) &= -i\frac{k_{\rm B}}{4}\int_{x_{k}-a}^{x_{k}+a}dx_{0}\left[\frac{(z-z_{k}-b)\mathrm{H}_{1}^{(1)}(k_{\rm B}\rho_{z1}^{2\mathrm{D}})}{\rho_{z1}^{2\mathrm{D}}} - \frac{(z-z_{k}+b)\mathrm{H}_{1}^{(1)}(k_{\rm B}\rho_{z2}^{2\mathrm{D}})}{\rho_{z2}^{2\mathrm{D}}}\right],\\ \nu_{xz}(\mathbf{r}_{//},\mathbf{r}_{//}^{k}) &= -\frac{i}{4}\left[\mathrm{H}_{0}^{(1)}(k_{\rm B}\rho_{xz1}^{2\mathrm{D}}) - \mathrm{H}_{0}^{(1)}(k_{\rm B}\rho_{xz2}^{2\mathrm{D}}) + \mathrm{H}_{0}^{(1)}(k_{\rm B}\rho_{xz3}^{2\mathrm{D}}) - \mathrm{H}_{0}^{(1)}(k_{\rm B}\rho_{xz4}^{2\mathrm{D}})\right],\\ avec\\ \rho_{xz1}^{2\mathrm{D}} &= \sqrt{(x-x_{k}-a)^{2} + (z-z_{k}-b)^{2}},\\ \rho_{xz3}^{2\mathrm{D}} &= \sqrt{(x-x_{k}+a)^{2} + (z-z_{k}+b)^{2}},\\ \rho_{xz4}^{2\mathrm{D}} &= \sqrt{(x-x_{k}+a)^{2} + (z-z_{k}-b)^{2}}. \end{split}$$

Annexe \mathcal{B}

Influence des pertes sur les taux d'émission

B.1 Expression de Γ_{SPP} sans perte

Le taux de couplage dans un guide sans perte est analytique et a pour expression[68, 98] :

$$\frac{\Gamma_{\rm SPP}}{\Gamma_0} = \frac{3\pi c\varepsilon_0 \mathbf{E} (\mathbf{R}+d) [\mathbf{E} (\mathbf{R}+d)]^*}{k_0^2 \int_{\mathbf{A}_\infty} (\mathbf{E} \times \mathbf{H}^*) . \overline{z} . d\mathbf{A}}$$
(B.1)

Pour un guide circulaire, les expressions des champs électrique sont connues et, dans le cas du plasmon, correspondent à [69]

$$\mathbf{E}_{1} = b_{1} \begin{bmatrix} \frac{ik_{//}k_{1\perp}}{k_{1}^{2}} \mathbf{H}_{0}'(k_{1\perp}r) \boldsymbol{e}_{r} + \frac{k_{1\perp}^{2}}{k_{1}^{2}} \mathbf{H}_{0}(k_{1\perp}r) \boldsymbol{e}_{z} \\ \mathbf{E}_{2} = b_{2} \begin{bmatrix} \frac{ik_{//}k_{2\perp}}{k_{2}^{2}} \mathbf{H}_{0}'(k_{2\perp}r) \boldsymbol{e}_{r} + \frac{k_{2\perp}^{2}}{k_{2}^{2}} \mathbf{H}_{0}(k_{2\perp}r) \boldsymbol{e}_{z} \end{bmatrix} e^{ik_{//}z} \\ \mathbf{H}_{1} = \frac{ik_{1\perp}b_{1}}{\omega\mu_{0}} \mathbf{H}_{0}'(k_{1\perp}r) e^{ik_{//}z} \boldsymbol{e}_{\theta} \\ \mathbf{H}_{2} = \frac{ik_{2\perp}b_{2}}{\omega\mu_{0}} \mathbf{H}_{0}'(k_{2\perp}r) e^{ik_{//}z} \boldsymbol{e}_{\theta}$$
(B.2)

Les coefficients b_1 et b_2 satisfont les relations de passage et donnent la relation de dispersion suivante

$$\frac{k_2^2}{k_{2\perp}} \frac{J_0'(k_{2\perp}R)}{J_0(k_{2\perp}R)} = \frac{k_1^2}{k_{1\perp}R} \frac{H_0'(k_{1\perp}R)}{H_0(k_{1\perp}R)}.$$
(B.3)

Au dénominateur de l'équation 3.1, l'intégrale du vecteur de Poynting sur une section transverse est analytique et fait intervenir le champ à l'intérieur et à l'extérieur du guide.

$$N_{out} = \int_{A_{out}} (\mathbf{E}_1 \wedge \mathbf{H}_1^*) \overline{z} dA = \int_{R}^{\infty} |b_1^2| \frac{k_{//} |k_{1\perp}|^2}{k_1^2 \omega \mu_0} |\mathbf{H}_0'(k_{1\perp}\rho)|^2 2\pi \rho d\rho .$$
(B.4)

En utilisant les propriétés des fonctions de Bessel et en utilisant le fait que $k_{1\perp} = \sqrt{\varepsilon_1 k_0^2 - k_{//}^2} = i \kappa_{1\perp}$, on obtient [130]

$$H'_{0}(k_{1\perp}\rho) = -H_{1}(k_{1\perp}\rho) = -\frac{2}{\pi}K_{1}(\kappa_{1\perp}\rho), \qquad (B.5)$$
Ainsi la valeur de N_{out} est donnée par

$$N_{out} = \frac{8}{\pi} |b_1^2| \frac{k_{//} |k_{1\perp}|^2}{k_1^2 \omega \mu_0} \int_{R}^{\infty} K_1^2(\kappa_{1\perp}\rho) \rho d\rho.$$
(B.6)

Le calcul de l'intégral donne alors [130]

$$N_{out} = \frac{4}{\pi} |b_1^2| \frac{k_{//} |k_{1\perp}|^2}{k_1^2 \omega \mu_0} R^2 \Big(K_0(\kappa_{1\perp} R) K_2(\kappa_{1\perp} R) - K_1^2(\kappa_{1\perp} R) \Big).$$
(B.7)

De même, il est possible d'obtenir l'intégrale sur l'intérieur de la fibre :

$$N_{in} = \frac{2}{\pi} |b_2^2| \frac{k_{//} |k_{2\perp}|^2}{k_2^2 \omega \mu_0} R^2 \Big(J_1^2(\kappa_{2\perp} R) - J_0(\kappa_{1\perp} R) J_2(\kappa_{12\perp} R) \Big).$$
(B.8)



FIGURE B.1 – Valeur du rapport des intégrales de champ modal N_{in}/N_{out} pour différents rayons d'un guide métallique d'or.

Comme le montre la figure 3.4, la principale contribution du champ est en dehors du guide, ainsi la contribution N_{in} peut être négligée. Cette simplification est vérifiée numériquement comme le montre la figure B.1 où le rapport N_{in}/N_{out} est représenté. Ainsi, N_{in} ne contribue que pour 4% (resp. 0.02%) à l'intégrale totale pour $\lambda = 525 nm$ (resp. $\lambda = 800 nm$).

On obtient finalement, grâce aux équations (B.2) et(B.7), l'expression analytique du taux de couplage dans le mode plasmon (Eq. 3.1) :

$$\frac{\Gamma_{\rm SPP}}{n_1 \Gamma_0} \approx \frac{3}{\varepsilon_1^{3/2}} \frac{1}{n_{eff}(\kappa_1 R)^2} \frac{E_u^2(d)}{K_0(\kappa_1 R) K_2(\kappa_1 R) - K_1(\kappa_1 R)^2},\tag{B.9}$$

où $k_{1\perp} = \sqrt{\varepsilon_1 k_0^2 - k_{\perp}^2} = i\kappa_1$. La valeur de $k_{1\perp}$ est imaginaire pure puisque $k_{//} < k_1$.

 E_u est la composante du champ électrique de mode plasmon parallèle à l'orientation du dipôle émetteur. Son expression est donnée eq B.2.

B.2 Calcul du taux non-radiatif

L'absorption de l'onde émise par un dipole n'est pas exclusivement due à la dissipation de l'énergie des ondes dont le vecteur d'onde est supérieur à l'indice du milieu. En effet,

une partie des ondes propagatives $(k_z < n_1 k_0)$ est absorbée lors de leur réflexion sur le métal.

Pour déterminer cette contribution, le taux radiatif est calculé pour un métal dont la partie imaginaire de la permittivité peut être annulée. On estime ainsi que pour une partie imaginaire nulle de la permittivité, l'intégrale de la LDOS donne le taux radiatif.

On remonte donc à une estimation de ce qui contribue à l'absorption par réflexion en effectuant la différence entre les intégrales de LDOS pour un métal réel et un métal idéal.

$$\Gamma_{\text{Nrad}}(|k_z| < n_1 k_0) = \Gamma_{\text{rad}}(\text{Im } \varepsilon_{\text{metal}} \neq 0) - \Gamma_{\text{rad}}(\text{Im } \varepsilon_{\text{metal}} = 0)$$
(B.10)

Comme en témoigne la figure B.2.a, l'écart entre les deux Γ_{Rad} est faible hormis à courte distance pour les orientations radiales et orthoradiales. Or à cette distance, la principale contribution du taux de couplage est non-radiative (cf. fig B.2.b). Ainsi, l'absorption des ondes propagatives n'a que peu d'effet sur le calcul de Γ_{Nrad} . En effet, on estime que, pour un émetteur orienté radialement, situé à une distance d = 5 nm d'un nanofil d'or de rayon R = 10 nm, les contributions aux taux non-radiatifs sont :

$$\begin{cases} \Gamma_{\text{N}rad}(|k_z| > n_1 k_0) \approx 130\\ \Gamma_{rad}(\text{Im } \varepsilon_{\text{metal}} \neq 0) - \Gamma_{rad}(\text{Im } \varepsilon_{\text{metal}} = 0) \approx 2 \end{cases}$$
(B.11)



FIGURE B.2 – Γ_{Rad} pour différentes orientations d'un dipole émettant à 800 nm et situé à une distance d d'un nanofil d'or de rayon R = 10 nm.

Annexe C

Fibre métallisée

C.1 Champ modal

C.1.1 Coefficient de normalisation

Un champ modal est défini pour un mode du guide invariant par translation selon $\mathcal{O}z$ par

$$\mathbf{E}_{i} = b_{i}(z)\boldsymbol{e}_{i}e^{i\beta_{j}z} \tag{C.1}$$

où b_j est l'amplitude du mode j, β_j son vecteur d'onde et e_j le champ modal orthonormé. La condition d'orthonormalisation pour un mode à perte s'écrit par [68]

$$N_{jk} = \frac{1}{2} \Big| \int_{A_{infty}} \boldsymbol{e}_j \wedge h_k . \mathrm{d}\mathbf{A} \Big| = \delta_{jk}$$
(C.2)

où δ_{jk} est le symbole de Kroenecker. Pour simplifier, nous noterons N_j le coefficient de normalisation du mode j. Son calcul est quasi-analytique en utilisant les champs modaux présentés le tableau ci-dessous (cf. Tab. C.1).

TABLE C.1 – Composantes du champ électromagnétique.

coeur		metal	
$\mathbf{E}_z^1(r) = a_1 \mathbf{J}_0(k_1 r)$		$E_z^2(r) = a_2 I_0(k_2 r) + a'_2 K_0(k_2 r)$	
$\mathbf{E}_r^1(r) = \underline{i\frac{\beta}{k_1}} a_1 \mathbf{J}_0'(k_1 r)$		$\mathbf{E}_{r}^{2}(r) = i\frac{\beta}{k_{2}} \left(a_{2}\mathbf{I}_{0}'(k_{2}r) + a_{2}'\mathbf{K}_{0}'(k_{2}r) \right)$	
$\mathrm{H}^{1}_{\theta}(r) = i \sqrt{\frac{\varepsilon_{0}}{\mu_{0}}} \frac{\varepsilon_{1\omega}}{k_{1}} a_{1} \mathrm{J}'_{0}(k_{1}r)$		$\mathbf{H}_{\theta}^{2}(r) = i \sqrt{\frac{\varepsilon_{0}}{\mu_{0}}} \frac{\varepsilon_{2}\omega}{k_{2}} \left(a_{2}\mathbf{I}_{0}'(k_{2}r) + a_{2}'\mathbf{K}_{0}'(k_{2}r) \right)$	
	milieu exterieur		
	$\mathbf{E}_z^3(r) = a_3 \mathbf{K}_0(k_3 r)$		
	$\mathbf{E}_r^3(r) = \underline{i\frac{\beta}{k_3}}\mathbf{K}_0'(k_3r)$		
H	$\mathrm{H}^{3}_{\theta}(r) =$	$=i\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}\frac{\varepsilon_3\omega}{k_3}}a_3\mathbf{K}_0'(k_3r)$	

La norme du champ est alors décomposée sur les différentes sections du guide

$$N_{j} = \frac{1}{2} \left| \int_{A_{infty}} \mathbf{E}_{j} \wedge \mathbf{H}_{j} d\mathbf{A} \right|$$

= $\frac{1}{2} \left| \int_{A_{1}} \mathbf{e}_{j} \wedge h_{j} d\mathbf{A} + \int_{A_{2}} \mathbf{e}_{j} \wedge h_{j} d\mathbf{A} + \int_{A_{3}} \mathbf{e}_{j} \wedge h_{j} d\mathbf{A} \right|$ (C.3)

Les surfaces A₁, A₂ et A₃ correspondent respectivement à une intégrale sur le coeur $(0 \le r \le R_1)$, le métal $(R_1 \le r \le R_2)$ et le milieu extérieur $(R_2 \le r \le \infty)$ (cf. fig C.1).



FIGURE C.1 – Géométrie des différents domaines d'intégration.

C.1.2 Calcul des intégrales de normalisation

Intégrale sur le coeur

Les modes étant TM, l'intégrale sur A_1 se résume à une intégrale sur le rayon. En tenant compte de l'orientation des champs, il vient :

$$\int_{A_1} \mathbf{E}_j \wedge \mathbf{H}_j . \mathrm{d}\mathbf{A} = 2\pi \int_0^{R_1} \mathrm{E}_r . \mathrm{H}_\theta r \mathrm{d}r$$
(C.4)

Remplaçons les champs dans l'intégrale :

$$\int_{A_1} \mathbf{E}_j \wedge \mathbf{H}_j \cdot \mathrm{d}\mathbf{A} = -2\pi \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \frac{\varepsilon_1 \omega}{k_1} \frac{\beta}{k_1} \int_0^{R_1} a_1^2 \mathrm{J}_0'^2(k_1 r) r \mathrm{d}r$$
(C.5)

Les intégrales connues sur les fonctions de Bessel cylindriques [68] permettent d'écrire :

$$\frac{1}{2} \int_{A_1} \mathbf{E}_j \wedge \mathbf{H}_j \cdot d\mathbf{A} = -\pi \varepsilon_1 \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \frac{k_0 \beta_j}{k_1^2} a_1^2 R_1^2 \Big(J_1(k_1 R_1)^2 - J_0(k_1 R_1) J_2(k_1 R_1) \Big) \quad (C.6)$$

Intégrale sur le métal

Les champs dans le métal font intervenir deux fonctions de Bessel I et K. Leur produit fait donc apparaître 3 intégrales différents :

$$\frac{1}{2} \int_{A_2} \mathbf{E}_j \wedge \mathbf{H}_j . \mathrm{d}\mathbf{A} = \frac{1}{2} \int_{R_1}^{R_2} \frac{\beta}{k_2} \left(a_2 \mathrm{I}'_0(k_2 r) + a'_2 \mathrm{K}'_0(k_2 r) \right) \times \\ \dots \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \frac{\varepsilon_2 \omega}{k_2} \left(a_2 \mathrm{I}'_0(k_2 r) + a'_2 \mathrm{K}'_0(k_2 r) \right) r \mathrm{d}r$$
(C.7)

$$\frac{1}{2} \int_{A_2} \mathbf{E}_j \wedge \mathbf{H}_j . \mathrm{d}\mathbf{A} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \frac{\varepsilon_2 \omega}{k_2} \frac{\beta}{k_2} \times \left[\mathcal{I}_1 + \mathcal{I}_2 + \mathcal{I}_3 \right]$$
(C.8)

avec :

$$\begin{aligned}
\mathcal{I}_{1} &= \int_{R_{1}}^{R_{2}} a_{2}^{2} I_{0}'(k_{2}r)^{2} r dr \\
\mathcal{I}_{2} &= \int_{R_{1}}^{R_{2}} a_{2}'^{2} K_{0}'^{2}(k_{2}r) r dr \\
\mathcal{I}_{3} &= 2 \int_{R_{1}}^{R_{2}} a_{2} a_{2}' I_{0}'(k_{2}r) K_{0}'(k_{2}r) r dr
\end{aligned} \tag{C.9}$$

L'intégrale \mathcal{I}_3 n'a pas pu être calculée analytiquement, elle est négligée et nous vérifierons plus loin que la normalisation des champs est bien vérifiée. À l'aide des intégrales connues des fonctions de Bessel [130], on obtient :

$$\frac{1}{2} \int_{A_2} \mathbf{E}_j \wedge \mathbf{H}_j \cdot d\mathbf{A} = \pi \varepsilon_2 \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0} \frac{k_0 \beta}{k_2^2}} \times \dots \\
\dots \left[a_2^2 \Big(\mathbf{R}_2^2 \big(\mathbf{I}_1^2(k_2 \mathbf{R}_2) - \mathbf{I}_0(k_2 \mathbf{R}_2) \mathbf{I}_2(k_2 \mathbf{R}_2) \Big) - \mathbf{R}_1^2 \big(\mathbf{I}_1^2(k_2 \mathbf{R}_1) - \mathbf{I}_0(k_2 \mathbf{R}_1) \mathbf{I}_2(k_2 \mathbf{R}_1) \big) \Big) + \dots \\
\dots + a_2'^2 \Big(\mathbf{R}_2^2 \big(\mathbf{K}_1^2(k_2 \mathbf{R}_2) - \mathbf{K}_0(k_2 \mathbf{R}_2) \mathbf{K}_2(k_2 \mathbf{R}_2) \big) - \mathbf{R}_1^2 \big(\mathbf{K}_1^2(k_2 \mathbf{R}_1) - \mathbf{K}_0(k_2 \mathbf{R}_1) \mathbf{K}_2(k_2 \mathbf{R}_1) \big) \Big) \right]$$

Intégrale dans le milieu extérieur

Une fois les précédentes intégrales effectuées, celle dans le milieu extérieure est de la même forme :

$$\frac{1}{2} \int_{A_3} \mathbf{E}_j \wedge \mathbf{H}_j \cdot d\mathbf{A} = \pi \varepsilon_3 \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \frac{k_0 \beta_j}{k_1^2} a_3^2 R_2^2 \Big(K_1 (k_3 R_2)^2 - K_0 (k_3 R_2) K_2 (k_3 R_2) \Big) \quad (C.10)$$

C.1.3 Vérification

Normalisation

Afin de contrôler les valeurs analytiques précédentes, nous avons calculé numériquement l'intégrale du champ modal. Dans la figure C.2, on remarquera que l'intégrale de normalisation comporte une partie imaginaire non négligeable.

On vérifie ques les modes sont normées $\mathcal{N}_{kk} \approx 1$ cf fig. C.2.

Orthogonalité

Les champs des modes liés $(k_z > 1)$ doivent vérifiées la condition d'orthonormalisation

$$N_{jk} = \frac{1}{2} \left| \int_{A_{\infty}} \boldsymbol{e}_j \wedge h_k . \mathrm{d}\mathbf{A} \right| = 0 \text{ pour } j \neq k$$
(C.11)

En revanche, pour les modes à fuites, la valeur complexe du champ ne permet pas de conserver l'orthogonalité entre les modes. Des méthodes permettent de contourner ce



FIGURE C.2 – Norme pour $\lambda = 600$ nm et d = 60 nm.

problème[68] mais ne sont pas considérées ici car ces modes ne présentent pas d'intérêt pour nos systèmes. Nous avons donc évaluer les parties imaginaires et réelles de

$$\mathcal{N}_{jk} = \frac{1}{2} \int_{\mathcal{A}_{\infty}} \boldsymbol{e}_j \wedge h_k.\mathrm{d}\mathbf{A}$$
(C.12)

où e_j correspond au mode TM_{01} et k au mode TM_{02} .



FIGURE C.3 – Coefficient \mathcal{N}_{jk} pour $\lambda = 600$ nm et d = 60 nm, e_j correspond au mode TM₀₁ et k au mode TM₀₂.

On vérifie ques les modes sont orthogonaux $\mathcal{N}_{j\neq k} \approx 0$ cf fig. C.3. Les fluctuations du coefficient d'orthogonalisation obtenues sont inférieures à 1%.

C.2 Calcul des coefficients de couplage avec perte

C.2.1 Equation de Maxwell pour le champ transverse pour le champ transverse

D'après la symétrie cylindrique de notre problème, le champ électromagnétique (\mathbf{E}, \mathbf{H}) d'un mode TM_{0n} est décomposé respectivement selon (\hat{r}, \hat{z}) et $\hat{\theta}$:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_r + \mathbf{E}_z = \mathbf{E}_r \hat{r} + \mathbf{E}_z \hat{z} \quad \text{et} \quad \mathbf{H} = \mathbf{H}_{\theta} \hat{\theta} \tag{C.13}$$

En utilisant la notation suivante pour l'opérateur nabla

$$\boldsymbol{\nabla} = \boldsymbol{\nabla}_t + \frac{\partial}{\partial z} \hat{z} \tag{C.14}$$

compte tenu du caractère TM_{0n} de l'on de électromagnétique, nous avons la relation suivante :

$$\boldsymbol{\nabla}_t \wedge \mathbf{E}_t = \mathbf{0} \tag{C.15}$$

les équations de Maxwell-Faraday et Maxwell-Ampère en l'absence de charge libre et de courant deviennent :

$$\begin{cases} \mathbf{\nabla} \wedge \mathbf{E} = i\sqrt{\mu_0/\varepsilon_0}k_0\mathbf{H} \\ \mathbf{\nabla} \wedge \mathbf{H} = -i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}k\varepsilon\mathbf{E} \end{cases} \to \begin{cases} \widehat{z} \wedge \frac{\partial \mathbf{E}_t}{\partial z} - \widehat{z} \wedge \mathbf{\nabla}_t\mathbf{E}_z = i\sqrt{\mu_0/\varepsilon_0}k_0\mathbf{H} \\ \mathbf{\nabla}_t \wedge \mathbf{H}_t + \widehat{z} \wedge \frac{\partial \mathbf{H}_t}{\partial z} = -i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}k\varepsilon(\mathbf{E}_r + \mathbf{E}_z) \end{cases} (C.16)$$

En projetant ces relations selon \hat{r} et \hat{z} , il vient

$$\begin{cases} \mathbf{H} = \frac{-i}{k_0} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \widehat{z} \wedge \left(\frac{\partial \mathbf{E}_r}{\partial z} - \boldsymbol{\nabla}_t \mathbf{E}_z\right) \\ \mathbf{E}_r = \frac{i}{k_0 \varepsilon} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \widehat{z} \wedge \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial z} \\ \mathbf{E}_z = \frac{i}{k_0 \varepsilon} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \boldsymbol{\nabla}_t \wedge \mathbf{H} \end{cases}$$
(C.17)

En éliminant les composantes longitudinales, on en déduit l'équation de propagation du champ électromagnétique longitudinal :

$$\begin{cases} \mathbf{H} = \frac{-i}{k_0} \widehat{z} \wedge \left(\frac{\partial \mathbf{E}_r}{\partial z} - \frac{1}{k_0} \nabla_t \wedge (\frac{\nabla_t \wedge \mathbf{H}}{\varepsilon}) \right) \\ \mathbf{E}_r = \frac{i}{k_0 \varepsilon} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \widehat{z} \wedge \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial z} \end{cases}$$
(C.18)

C.2.2 Cas d'un champ modal

Le champ électromagnétique d'un mode j dans pour une fibre uniforme, défini par $\mathbf{E}_j = e^{i\beta_j}(\mathbf{e}_{rj} + \mathbf{e}_{zj})$ et $\mathbf{H}_j = e^{i\beta_j}\mathbf{h}_j$ satisfait les équations de propagation précédentes. On en déduit que

$$\begin{cases} e^{i\beta_j} \boldsymbol{h}_j = \frac{-i}{k_0} \widehat{z} \wedge \left(\frac{\partial e^{i\beta_j} \boldsymbol{e}_{rj}}{\partial z} - \frac{1}{k_0} \boldsymbol{\nabla}_t \wedge (\frac{1}{\varepsilon} \boldsymbol{\nabla}_t \wedge e^{i\beta_j} \boldsymbol{h}_j) \right) \\ e^{i\beta_j} \boldsymbol{e}_{rj} = \frac{i}{k_0 \varepsilon} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \widehat{z} \wedge \frac{\partial e^{i\beta_j} \boldsymbol{h}_j}{\partial z} \end{cases}$$
(C.19)

Après simplification, en tenant compte du fait que pour un guide uniforme e_j et h_j ne dépendent pas de z, il vient :

$$\begin{cases} \boldsymbol{h}_{j} = \frac{-i}{k_{0}} \widehat{\boldsymbol{z}} \wedge \left(i\beta_{j} \boldsymbol{e}_{rj} - \frac{1}{k_{0}} \boldsymbol{\nabla}_{t} \wedge (1/\varepsilon \boldsymbol{\nabla}_{t} \wedge \boldsymbol{h}_{j}) \right) \\ \boldsymbol{e}_{rj} = \frac{-\beta_{j}}{k_{0}\varepsilon} \sqrt{\frac{\mu_{0}}{\varepsilon_{0}}} \widehat{\boldsymbol{z}} \wedge \boldsymbol{h}_{j} \end{cases}$$
(C.20)

C.2.3 Equations de propagation

Pour un guide de rayon variable, on cherche à déterminer l'équation différentielle vérifiée par les coefficients $b_j(z)$. On suppose donc que le champ électromagnétique ainsi défini (cf. eq 4.3) vérifie les équations de propagation du champ transverse. On obtient donc :

$$\begin{cases} \Sigma_{j} (b_{j}(z) - b_{-j}(z)) \mathbf{h}_{j} = \frac{-i}{k_{0}} \widehat{z} \wedge \left(\frac{\partial \Sigma_{j} (b_{j}(z) + b_{-j}(z)) \mathbf{e}_{rj}}{\partial z} - \dots \right. \\ \frac{1}{k_{0}} \nabla_{t} \wedge \left(\frac{\nabla_{t} \wedge \Sigma_{j} (b_{j}(z) - b_{-j}(z)) \mathbf{h}_{j}}{\varepsilon} \right) \right) \\ \Sigma_{j} (b_{j}(z) + b_{-j}(z)) \mathbf{e}_{rj} = \frac{i}{k_{0} \varepsilon} \sqrt{\frac{\mu_{0}}{\varepsilon_{0}}} \widehat{z} \wedge \frac{\partial \Sigma_{j} (b_{j}(z) - b_{-j}(z)) \mathbf{h}_{j}}{\partial z} \end{cases}$$
(C.21)

En tenant compte de la dépendance implicite des champ e_{rj} et h_j en fonction de z, il vient, avec $b'_j(z) = \frac{\mathrm{d}b_j}{\mathrm{d}z}$:

$$\begin{cases} \Sigma_{j} (b_{j}(z) - b_{-j}(z)) \mathbf{h}_{j} = \frac{-i}{k_{0}} \widehat{z} \wedge \left(\Sigma_{j} (b_{j}(z) + b_{-j}(z)) \frac{\partial \mathbf{e}_{rj}}{\partial z} + \Sigma_{j} (b'_{j}(z) + b'_{-j}(z)) \mathbf{e}_{rj} - \Sigma_{j} (b_{j}(z) - b_{-j}(z)) \frac{1}{k_{0}} \nabla_{t} \wedge (\frac{\nabla_{t} \wedge \mathbf{h}_{j}}{\varepsilon}) \right) \qquad (C.22)\\ \Sigma_{j} (b_{j}(z) + b_{-j}(z)) \mathbf{e}_{rj} = \frac{i}{k_{0}\varepsilon} \sqrt{\frac{\mu_{0}}{\varepsilon_{0}}} \widehat{z} \wedge \left(\Sigma_{j} (b_{j}(z) - b_{-j}(z)) \frac{\partial \mathbf{h}_{j}}{\partial z} + \Sigma_{j} (b'_{j}(z) - b'_{-j}(z)) \mathbf{h}_{j} \right) \end{cases}$$

L'équation (C.20) permet d'établir des équations faisant intervenir uniquement le champ électrique ou magnétique, on en déduit que

$$\begin{cases} \Sigma_{j} (b_{j}(z) - b_{-j}(z)) \frac{\beta_{j}}{k_{0}} \widehat{z} \wedge \mathbf{e}_{rj} = \frac{-i}{k_{0}} \widehat{z} \wedge \left(\Sigma_{j} (b_{j}(z) + b_{-j}(z)) \frac{\partial \mathbf{e}_{rj}}{\partial z} + \dots \right) \\ \dots + \Sigma_{j} (b_{j}'(z) + b_{-j}(z)) \mathbf{e}_{rj} \\ -\Sigma_{j} (b_{j}(z) + b_{-j}(z)) \frac{\beta_{j}}{k_{0}\varepsilon} \sqrt{\frac{\mu_{0}}{\varepsilon_{0}}} \widehat{z} \wedge \mathbf{h}_{j} = \frac{-i}{k_{0}\varepsilon} \sqrt{\frac{\mu_{0}}{\varepsilon_{0}}} \widehat{z} \wedge \left(\Sigma_{j} (b_{j}(z) - b_{-j}(z)) \frac{\partial \mathbf{h}_{j}}{\partial z} + \dots \right) \\ \dots + \Sigma_{j} (b_{j}'(z) - b_{-j}'(z)) \mathbf{h}_{j} \end{cases}$$
(C.23)

Multiplions par respectivement par h_k et e_{rk} les deux équations obtenues (cf. eq C.23), il vient

$$\begin{cases} \Sigma_{j} \Big[-i\beta_{j} \big(b_{j}(z) - b_{-j}(z) \big) + \big(b_{j}'(z) + b_{-j}'(z) \big) \Big] (\boldsymbol{e}_{rj} \wedge h_{k}) . \hat{z} = ... \\ ... - \Sigma_{j} \big(b_{j}(z) + b_{-j}(z) \big) \big(\frac{\partial \boldsymbol{e}_{rj}}{\partial z} \wedge h_{k} \big) . \hat{z} \\ \Sigma_{j} \Big[-i\beta_{j} \big(b_{j}(z) + b_{-j}(z) \big) + \big(b_{j}'(z) - b_{-j}'(z) \big) \Big] (\boldsymbol{e}_{rj} \wedge h_{k}) . \hat{z} = ... \\ ... \Sigma_{j} \big(b_{j}(z) - b_{-j}(z) \big) \big(\frac{\partial \boldsymbol{h}_{j}}{\partial z} \wedge \boldsymbol{e}_{rk} \big) . \hat{z} \end{cases}$$
(C.24)

On note \mathcal{N}_k , le facteur de pseudo-normalisation défini par $N_k = |\mathcal{N}_k|$:

$$\mathcal{N}_{k} = \frac{1}{2} \int_{\mathcal{A}_{\infty}} (\boldsymbol{e}_{rk} \wedge \boldsymbol{h}_{k}) . \hat{\boldsymbol{z}} \mathrm{d}\boldsymbol{A}$$
(C.25)

Utilisons les propriétés d'orthogonalité des champs. Par intégration sur une section infinie , on obtient :

$$\begin{cases} 2\mathcal{N}_{k} \Big[-i\beta_{k} \big(b_{k}(z) - b_{-k}(z) \big) + \big(b_{k}'(z) + b_{-k}'(z) \big) \Big] = \dots \\ \dots - \Sigma_{j} \big(b_{j}(z) + b_{-j}(z) \big) \int_{A_{\infty}} \big(\frac{\partial \boldsymbol{e}_{rj}}{\partial z} \wedge h_{k} \big) . \hat{z} . \mathrm{dA} \\ 2\mathcal{N}_{k} \Big[-i\beta_{k} \big(b_{k}(z) + b_{-jk}(z) \big) + \big(b_{k}'(z) - b_{-k}'(z) \big) \Big] = \dots \\ \dots \Sigma_{j} \big(b_{j}(z) - b_{-j}(z) \big) \int_{A_{\infty}} \big(\frac{\partial \boldsymbol{h}_{j}}{\partial z} \wedge \boldsymbol{e}_{rk} \big) . \hat{z} \mathrm{dA} \end{cases}$$
(C.26)

Effectuons la demi-somme, on obtient

$$2\mathcal{N}_{k}\left(-i\beta_{k}b_{k}(z)+b_{k}'(z)\right) = \dots \qquad (C.27)$$
$$\dots \frac{1}{2}\Sigma_{j}b_{j}(z)\left[-\int_{A_{\infty}}\left(\frac{\partial \boldsymbol{e}_{rj}}{\partial z}\wedge h_{k}\right).\widehat{z}.dA + \int_{A_{\infty}}\left(\frac{\partial \boldsymbol{h}_{j}}{\partial z}\wedge \boldsymbol{e}_{rk}\right).\widehat{z}dA\right]$$
$$+\frac{1}{2}\Sigma_{j}b_{-j}(z)\left[-\int_{A_{\infty}}\left(\frac{\partial \boldsymbol{e}_{rj}}{\partial z}\wedge h_{k}\right).\widehat{z}.dA - \int_{A_{\infty}}\left(\frac{\partial \boldsymbol{h}_{j}}{\partial z}\wedge \boldsymbol{e}_{rk}\right).\widehat{z}dA\right]$$

Le coefficient de couplage du mode k avec le mode j est alors défini par :

$$C_{kj} = \frac{1}{4N_k} \int_{A_{\infty}} \left(-\frac{\partial \boldsymbol{e}_{rj}}{\partial z} \wedge h_k + \frac{\partial \boldsymbol{h}_j}{\partial z} \wedge \boldsymbol{e}_{rk} \right) \cdot \widehat{z} dA$$
(C.28)

Pour l'aspect esthétique, intervertissons j et k. En négligeant les termes contrapropagatifs, on en déduit que les équations couplées s'écrivent alors :

$$b'_{j}(z) - i\beta_{j}b_{j}(z) = \Sigma_{k}C_{jk}b_{k}(z)$$
(C.29)

avec C_{jk} défini par

$$C_{jk} = \frac{1}{4N_j} \int_{A_{\infty}} \left(\boldsymbol{h}_j \wedge \frac{\partial \boldsymbol{e}_{rk}}{\partial z} - \boldsymbol{e}_{rk} \wedge \frac{\partial \boldsymbol{h}_j}{\partial z} \right) \cdot \hat{z} dA \quad \text{et} \quad C_{jj} = 0$$
(C.30)

On remarquera que le coefficient ainsi obtenu redonne exactement le coefficient obtenu pour des modes sans pertes [68].

Université de Bourgogne

C.2.4 Autre forme du coefficient de couplage

Equation de base

La dépendance des champs modaux e_j et h_j est implicite par le vecteur d'onde. Le calcul direct de la dérivée longitudinale de ces champs reste ardu, on préfère donc une autre formulation grâce à l'équation (C.20). En effet, considérons la fibre étirée, la deuxième ligne se réécrit par

$$-i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}k_0\varepsilon(z)\boldsymbol{e}_{rj}(r,z) = i\beta_j(z)\widehat{z}\wedge\boldsymbol{h}_j(r,z)$$
(C.31)

Ajoutons le champ magnétique longitudinal pour obtenir une forme complète du champ électromagnétique :

$$\begin{cases} -i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}k_0\varepsilon(z)\boldsymbol{e}_j(r,z) = i\beta_j(z)\widehat{z}\wedge\boldsymbol{h}_j(r,z) + \boldsymbol{\nabla}_t\wedge\boldsymbol{h}_j \\ i\sqrt{\mu_0/\varepsilon_0}k_0\boldsymbol{h}_j = i\beta_j(z)\widehat{z}\wedge\boldsymbol{e}_j + \boldsymbol{\nabla}_t\wedge\boldsymbol{e}_j \end{cases}$$
(C.32)

Equation sur le champ électrique

Multiplions la première équation par $\widetilde{e}'_k = -e_{zk} + e_{rk}$, il vient :

$$-i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}k_0\varepsilon\boldsymbol{e}_j\widetilde{\boldsymbol{e}}_k' = i\beta_j(\widehat{\boldsymbol{z}}\wedge\boldsymbol{h}_j)\widetilde{\boldsymbol{e}}_k' + (\boldsymbol{\nabla}_t\wedge\boldsymbol{h}_j).\widetilde{\boldsymbol{e}}_k'$$
(C.33)

Dérivons la première équation de eq.C.32 pour j = k, il vient :

$$-i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}k_0(\varepsilon'\boldsymbol{e}_k+\varepsilon\boldsymbol{e}'_k)=-(i\beta'_k\widehat{z}\wedge\boldsymbol{h}_k+i\beta_k\widehat{z}\wedge\boldsymbol{h}'_k)+\boldsymbol{\nabla}_t\wedge\boldsymbol{h}'_k \qquad (C.34)$$

Multiplions cette équation par \widetilde{e}_j , il vient :

$$-i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}k_0(\varepsilon'\boldsymbol{e}_k.\widetilde{\boldsymbol{e}}_j+\varepsilon\boldsymbol{e}'_k.\widetilde{\boldsymbol{e}}_j)=-i\beta'_k(\widehat{\boldsymbol{z}}\wedge\boldsymbol{h}_k).\widetilde{\boldsymbol{e}}_j+\dots$$
(C.35)

...
$$i\beta_k(\widehat{z} \wedge \boldsymbol{h}'_k)\widetilde{\boldsymbol{e}}_j + (\boldsymbol{\nabla}_t \wedge \boldsymbol{h}'_k).\widetilde{\boldsymbol{e}}_j$$
 (C.36)

Soustrayons les deux équations C.33 et C.36, et on obtient

$$i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}k_0\varepsilon'\boldsymbol{e}_j.\widetilde{\boldsymbol{e}}_k = i\beta_j(\widehat{\boldsymbol{z}}\wedge\boldsymbol{h}_j)\widetilde{\boldsymbol{e}}'_k + (\boldsymbol{\nabla}_t\wedge\boldsymbol{h}_j).\widetilde{\boldsymbol{e}}'_k + i\beta'_k(\widehat{\boldsymbol{z}}\wedge\boldsymbol{h}_k).\widetilde{\boldsymbol{e}}_j - \dots \quad (C.37)$$

...
$$i\beta_k(\widehat{z} \wedge \boldsymbol{h}'_k)\widetilde{\boldsymbol{e}}_j - (\boldsymbol{\nabla}_t \wedge \boldsymbol{h}'_k).\widetilde{\boldsymbol{e}}_j \quad (C.38)$$

Equation sur le champ magnétique

Occupons nous maintenant de la deuxième équation de eq.C.32. Multiplions cette équation par h'_k , il vient :

$$i\sqrt{\mu_0/\varepsilon_0}k_0\boldsymbol{h}_j.\boldsymbol{h}'_k = i\beta_j(\widehat{z}\wedge\boldsymbol{e}_j)\boldsymbol{h}'_k + (\boldsymbol{\nabla}_t\wedge\boldsymbol{e}_j).\boldsymbol{h}'_k$$
(C.39)

Dérivons la deuxième équation de eq.C.32 pour j = k, il vient

$$i\sqrt{\mu_0/\varepsilon_0}k_0\boldsymbol{h}'_k = i\beta'_k\widehat{z}\wedge\boldsymbol{e}_k + i\beta_k\widehat{z}\wedge\boldsymbol{e}'_k + \boldsymbol{\nabla}_t\wedge\boldsymbol{e}'_k \tag{C.40}$$

Multiplions cette équation par h_j , il vient :

$$i\sqrt{\mu_0/\varepsilon_0}k_0\boldsymbol{h}'_k.\boldsymbol{h}_j = i\beta'_k(\widehat{z}\wedge\boldsymbol{e}_k).\boldsymbol{h}_j + i\beta_k(\widehat{z}\wedge\boldsymbol{e}'_k).\boldsymbol{h}_j + (\boldsymbol{\nabla}_t\wedge\boldsymbol{e}'_k).\boldsymbol{h}_j \qquad (C.41)$$

Soustrayons les équations C.39 et C.41

$$0 = i\beta_j(\widehat{z} \wedge \boldsymbol{e}_j)\boldsymbol{h}'_k + (\boldsymbol{\nabla}_t \wedge \boldsymbol{e}_j)\boldsymbol{h}'_k - i\beta'_k(\widehat{z} \wedge \boldsymbol{e}_k)\boldsymbol{h}_j \dots$$
(C.42)

$$-i\beta_k(\widehat{z}\wedge \boldsymbol{e}'_k).\boldsymbol{h}_j - (\boldsymbol{\nabla}_t\wedge \boldsymbol{e}'_k).\boldsymbol{h}_j \qquad (C.43)$$

Utilisons les propriétés du produit mixte suivant :

$$\begin{cases} \boldsymbol{\nabla}_{t}.(\boldsymbol{e}'_{k} \wedge \boldsymbol{h}_{j}) = \boldsymbol{h}_{j}.(\boldsymbol{\nabla}_{t} \wedge \boldsymbol{e}'_{k}) - \boldsymbol{e}'_{k}.(\boldsymbol{\nabla}_{t} \wedge \boldsymbol{h}_{j}) \\ \boldsymbol{\nabla}_{t}.(\boldsymbol{e}_{j} \wedge \boldsymbol{h}'_{k}) = \boldsymbol{h}'_{k}.(\boldsymbol{\nabla}_{t} \wedge \boldsymbol{e}_{j}) - \boldsymbol{e}_{j}.(\boldsymbol{\nabla}_{t} \wedge \boldsymbol{h}'_{k}) \end{cases}$$
(C.44)

L'équation C.43 peut s'écrire sous une forme permettant de simplifier les termes contenant un opérateur ∇_t de l'équation C.38.

$$0 = \boldsymbol{\nabla}_t \cdot (\boldsymbol{e}_j \wedge \boldsymbol{h}'_k) + (\boldsymbol{\nabla}_t \wedge \boldsymbol{h}'_k) \cdot \boldsymbol{e}_j - \boldsymbol{\nabla}_t \cdot (\boldsymbol{e}_j \wedge \boldsymbol{h}'_k) - \boldsymbol{e}'_k \cdot (\boldsymbol{\nabla}_t \wedge \boldsymbol{h}_j) \dots$$
(C.45)
$$\dots + i\beta_j (\widehat{z} \wedge \boldsymbol{e}_j) \boldsymbol{h}'_k - i\beta'_k (\widehat{z} \wedge \boldsymbol{e}_k) \cdot \boldsymbol{h}_j - i\beta_k (\widehat{z} \wedge \boldsymbol{e}'_k) \cdot \boldsymbol{h}_j$$

Bilan

Remarquons maintenant que l'utilisation du champ \tilde{e} permet d'éliminer les termes contenant un opérateur ∇_t . En effet, comme le champ magnétique est porté par $\hat{\theta}$, $\nabla_t \wedge h_j$ est porté par \hat{z} , le produit scalaire avec \tilde{e} est l'opposé du produit scalaire avec e. En revanche les termes projeté sur \hat{r} restent inchangés. L'équation C.38 devient :

$$i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}k_0\varepsilon'\boldsymbol{e}_j.\widetilde{\boldsymbol{e}}_k = i\beta_j(\widehat{\boldsymbol{z}}\wedge\boldsymbol{h}_j).\boldsymbol{e}'_k - (\boldsymbol{\nabla}_t\wedge\boldsymbol{h}_j).\boldsymbol{e}'_k + i\beta'_k(\widehat{\boldsymbol{z}}\wedge\boldsymbol{h}_k).\boldsymbol{e}_j - \dots \quad (C.46)$$

$$..i\beta_k(\widehat{z}\wedge h'_k).e_j + (\nabla_t\wedge h'_k).e_j$$
 (C.47)

Soustrayons les équations C.47 et C.46, il vient :

$$i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0}k_0\varepsilon'\boldsymbol{e}_j.\boldsymbol{\tilde{e}}_k = -\boldsymbol{\nabla}_t.(\boldsymbol{e}_j \wedge \boldsymbol{h}'_k) + \boldsymbol{\nabla}_t.(\boldsymbol{e}_j \wedge \boldsymbol{h}'_k)$$
(C.48)
$$+i\beta_j \Big((\hat{z} \wedge \boldsymbol{h}_j).\boldsymbol{e}'_k - (\hat{z} \wedge \boldsymbol{e}_j)\boldsymbol{h}'_k \Big)$$
$$-i\beta_k \Big((\hat{z} \wedge \boldsymbol{h}'_k).\boldsymbol{e}_j + (\hat{z} \wedge \boldsymbol{e}'_k).\boldsymbol{h}_j \Big)$$
$$+i\beta'_k (\hat{z} \wedge \boldsymbol{e}_k).\boldsymbol{h}_j + i\beta'_k (\hat{z} \wedge \boldsymbol{h}_k).\boldsymbol{e}_j$$

Intégrons sur une section infinie, le terme en facteur de β'_j s'annule par orthogonalité. D'après le théorème divergence [68], le terme contenant l'opérateur ∇_t s'annule puisque les champs s'annulent à l'infini. On remarquera donc que la démonstration proposée ici n'est plus valable pour des modes à fuites. On fait alors apparaître les coefficients de couplage grâce aux propriétés du produit mixte :

$$\int_{A_{\infty}} i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0} k_0 \varepsilon' \boldsymbol{e}_j . \boldsymbol{\tilde{e}}_k = i\beta_j \int_{A_{\infty}} \left((\boldsymbol{h}_j \wedge \boldsymbol{e}'_k) . \boldsymbol{\hat{z}} - (\boldsymbol{e}_j \wedge \boldsymbol{h}'_k) . \boldsymbol{\hat{z}} \right) dA \qquad (C.49)$$
$$-i\beta_k \int_{A_{\infty}} \left((\boldsymbol{h}'_k \wedge \boldsymbol{e}_j) . \boldsymbol{\hat{z}} + (\boldsymbol{e}'_k \wedge \boldsymbol{h}_j) . \boldsymbol{\hat{z}} \right) dA$$

$$\int_{\mathcal{A}_{\infty}} i\sqrt{\varepsilon_0/\mu_0} k_0 \varepsilon' \boldsymbol{e}_j . \widetilde{\boldsymbol{e}}_k = i\beta_j \times 4\mathcal{N}_j \mathcal{C}_{jk} - i\beta_k \times 4\mathcal{N}_j \mathcal{C}_{jk}$$
(C.50)

On obtient alors le coefficient de couplage sous une forme plus facilement calculable :

$$C_{jk} = \frac{1}{4N_j} \frac{k_0}{\beta_j - \beta_k} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \int_{A_\infty} \varepsilon' \boldsymbol{e}_j . \widetilde{\boldsymbol{e}}_k . dA$$
(C.51)

Il faut noter ici que ce coefficient devient identique à celui obtenu dans des milieux sans dissipation ([105]). En effet, en l'absence de perte, les champs longitudinaux sont imaginaires purs et leurs composantes radiales purement réelles. Ainsi le coefficient \mathcal{N}_j vaut 1 et le terme $e_j \cdot \tilde{e_k}$ est équivalent à $e_j \cdot e_k^*$ où * désigne le conjugué.

C.2.5 Simplification du coefficient de couplage

Le calcul du coefficient de couplage peut se simplifier grâce à l'expression de ε et en utilisant la continuité des vecteurs déplacement électrique $d_r = \varepsilon e_r$ et de la composante longitudinale du champ électrique à l'interface entre deux milieux dieléctriques. Décomposons le coefficient de couplage selon ces deux composantes :

$$C_{jk} = \frac{1}{4N_j} \frac{k_0}{\beta_j - \beta_k} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \int_{A_{infty}} \left(\frac{\varepsilon'}{\varepsilon^2} (\varepsilon e_{rj}) . (\varepsilon e_{rk}) - \varepsilon' e_{zj} . e_{zk}\right) . dA$$
(C.52)

Les modes considérés étant TM, grâce à l'invariance par rotation autour de Oz, l'équation C.52 se résume à une intégrale sur r:

$$C_{jk} = \frac{1}{4N_j} \frac{k_0}{\beta_j - \beta_k} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \int_0^\infty \left[\frac{\partial 1/\varepsilon}{\partial z} d_{rj} d_{rk} - \varepsilon' e_{zj} e_{zk} \right] .2\pi r dr$$
(C.53)

Pour un système possédant deux couches, la permittivité peut s'écrire sous la forme

$$\frac{1}{\varepsilon(r,z)} = \frac{1}{\varepsilon_1} + \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - \frac{1}{\varepsilon_1}\right)\Theta(r - R_1(z)) + \left(\frac{1}{\varepsilon_3} - \frac{1}{\varepsilon_2}\right)\Theta(r - R_2(z))$$
(C.54)

où Θ est la distribution de heavyside. Ainsi, par dérivation , il vient :

$$\frac{\partial}{\partial z}\frac{1}{\varepsilon(r,z)} = -\frac{\mathrm{dR}_1}{\mathrm{d}z}\Big(\frac{1}{\varepsilon_2} - \frac{1}{\varepsilon_1}\Big)\delta(r - \mathrm{R}_1(z)) - \frac{\mathrm{dR}_2}{\mathrm{d}z}\Big(\frac{1}{\varepsilon_3} - \frac{1}{\varepsilon_2}\Big)\delta(r - \mathrm{R}_2(z)) \quad (C.55)$$

Or, en supposant l'épaisseur constante : $-dR_i/dz = tan\alpha \approx \alpha$. On en déduit que

$$\frac{\partial}{\partial z}\frac{1}{\varepsilon(r,z)} = \alpha \left[\left(\frac{1}{\varepsilon_2} - \frac{1}{\varepsilon_1}\right) \delta(r - R_1(z)) + \left(\frac{1}{\varepsilon_3} - \frac{1}{\varepsilon_2}\right) \delta(r - R_2(z)) \right]$$
(C.56)

De la même façon, la permittivité d'un système bicouche, peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\varepsilon(r,z) = \varepsilon_1 + (\varepsilon_2 - \varepsilon_1)\Theta(r - R_1(z)) + (\varepsilon_3 - \varepsilon_2)\Theta(r - R_2(z))$$
(C.57)

En utilisant les simplifications précédentes, il vient :

$$\varepsilon'(r,z) = \alpha \Big[(\varepsilon_2 - \varepsilon_1) \delta(r - \mathbf{R}_1(z)) + (\varepsilon_3 - \varepsilon_2) \delta(r - \mathbf{R}_2(z)) \Big]$$
(C.58)

Utilisons l'expression de la permittivité (cf. eq C.56 et eq.C.58), dans l'expression du coefficient de couplage (cf. eq C.53) il vient :

$$C_{jk} = \frac{\pi \alpha}{2\mathcal{N}_{j}} \frac{k_{0}}{\beta_{j} - \beta_{k}} \sqrt{\frac{\varepsilon_{0}}{\mu_{0}}} \Big[R_{1} \Big(\frac{1}{\varepsilon_{2}} - \frac{1}{\varepsilon_{1}} \Big) d_{rj} \big|_{r=R_{1}} d_{rk} \big|_{r=R_{1}} - \dots \\ \dots R_{1} e_{zj} \big|_{r=R_{1}} e_{zk} \big|_{r=R_{1}} + \dots \\ \dots R_{2} \Big(\frac{1}{\varepsilon_{3}} - \frac{1}{\varepsilon_{2}} \Big) d_{rj} \big|_{r=R_{2}} d_{rk} \big|_{r=R_{2}} - R_{2} e_{zj} \big|_{r=R_{2}} e_{zk} \big|_{r=R_{2}} \Big]$$
(C.59)

Pour des facilités numériques, on utilise les valeurs de $e_r = d_r/\varepsilon$ en dehors de la zone métallique :

$$d_{rj}|_{r=R_1} = \varepsilon_1 e_{rj}|_{r=R_1^-}$$
 et $d_{rj}|_{r=R_2} = \varepsilon_3 e_{rj}|_{r=R_2^+}$ (C.60)

$$C_{jk} = \frac{\pi \alpha}{2\mathcal{N}_{j}} \frac{k_{0}}{\beta_{j} - \beta_{k}} \sqrt{\frac{\varepsilon_{0}}{\mu_{0}}} \Big[R_{1}(\varepsilon_{1} - \varepsilon_{2}) \big(\varepsilon_{1}/\varepsilon_{2} e_{rj} \big|_{r=R_{1}^{-}} \cdot e_{rk} \big|_{r=R_{1}^{-}} + \dots \\ \dots e_{zj} \big|_{r=R_{1}} \cdot e_{zk} \big|_{r=R_{1}^{-}} \big) + \dots \\ \dots R_{2} (\varepsilon_{2} - \varepsilon_{3}) \big(\frac{\varepsilon_{3}}{\varepsilon_{2}} e_{rj} \big|_{r=R_{2}^{+}} \cdot e_{rk} \big|_{r=R_{2}^{+}} + e_{zj} \big|_{r=R_{2}} \cdot e_{zk} \big|_{r=R_{2}^{-}} \big) \Big]$$
(C.61)

C.3 Justification de la représentation avec $\Sigma_j |b_j^2|$

La relation d'orthonormalisation définie par

$$N_{jk} = \frac{1}{2} \left| \int_{A_{\infty}} (\boldsymbol{e}_j \wedge \boldsymbol{h}_k^*) . \mathrm{d} \mathbf{A} \right| = \delta_{jk}$$
(C.62)

où δ_{jk} est le symbole de kronecker, reste valable à mieux de quelques pour cent pour une forme non conjuguée :

$$N'_{jk} = \frac{1}{2} \left| \int_{A_{\infty}} (\boldsymbol{e}_j \wedge \boldsymbol{h}_k) . \mathrm{d} \boldsymbol{A} \right| \approx \delta_{jk}$$
(C.63)

Afin de simplifier les calculs, nous nous sommes restreints à représenter $\Sigma_j |b_j^2|$ comme la puissance restante à l'intérieur de la fibre. Les figures suivantes (cf. Fig. C.4 et Fig. C.5) montrent la différence entre la puissance totale rayonnée sur une section infinie du guide, exprimée par

$$\mathcal{P} = \frac{1}{2} \left| \int_{A_{\infty}} (\mathbf{E} \wedge \mathbf{H}^*) . \mathbf{dA} \right|$$
(C.64)

avec $\mathbf{E} = \sum_i b_i \boldsymbol{e}_i$ et $\mathbf{H} = \sum_i b_i \boldsymbol{h}_i$, et la puissance approximée par $\sum_j |b_j^2|$.



FIGURE C.4 – Puissance pour $\lambda = 600$ nm et d = 60 nm.



FIGURE C.5 – Puissance pour $\lambda = 1550$ nm et d = 80 nm.

Annexe \mathcal{D}

Nanosource optique Fibrée

D.1 Vérification de la puissance émise par un dipole

Dans le vide, la puissance rayonnée par un dipole de moment dipolaire p_0 oscillant à la pulsation ω est donnée par

$$P_0 = \frac{\mu_0 p_0^2 \omega^4}{12\pi c}$$
(D.1)

Nous avons effectué l'intégrale du vecteur de Poynting sortant d'un cylindre de hauteur égale au diamètre. Cette intégrale est calculée pour différents valeurs du rayon de ce cylindre dans une fenêtre de calcul comparable à celle utilisée avec une fibre. Les tailles des éléments choisis par Comsol sont quasi-identiques et l'intégrale est représentée cidessous (fig. D.1).



FIGURE D.1 – Vérification de la norme de la puissance rayonnée par un dipole en fonction de la taille de la surface d'intégration.

On remarque que l'erreur commise en prenant un rayon du cylindre d'intégration de 1 nm est inférieur à 1%.

D.2 Optimisation de la taille de la fenêtre de calcul

Pour différentes valeurs de la largeur de la fenêtre de calcul, nous avons représenté fig.D.2, l'excitation magnétique à l'extrémité de la fibre. Cette dernière est excitée par un dipole à 30 nm de la pointe. Il apparaît que le champ à l'intérieur de la fibre est très peu affecté par la taille de la fenêtre d'intégration.



FIGURE D.2 – Profil du champ dans la fibre pour différentes largeur de fenêtre. La couche PML a pour épaisseur 400 nm. Le rayon de la fibre nue est de $R_0 = 400$ nm.

En revanche, afin d'évaluer la projection du mode obtenu numérique sur le mode TM_{01} analytique, la fenêtre nécessite une taille d'au moins 800 nm cf. fig.D.3. En effet, pour L = 800 nm, le terme de normalisation défini par l'équation D.2 vaut 0,98 (au lieu de 1 pour une borne infinie, $L \to \infty$).

$$N_{TM_{01}} = \frac{1}{2} \left| \int_0^L (\boldsymbol{e} \wedge \boldsymbol{h}) . \hat{z} 2\pi r dr \right|$$
(D.2)

D.2.1 Épaisseur de la couche PML

L'excitation magnétique dans la fibre est tracée pour différentes valeurs de l'épaisseur d'une couche absorbante dans la figure D.4. Cette dernière est censée éviter les réflexions aux limites du domaine d'étude. On remarque que l'efficacité de la PML latérale est suffisante dès $l_{\rm PML} \sim 100 nm$. Ceci s'explique par le fait que l'énergie se déplace le long de la fibre. Seule une petite fraction de l'énergie radiative émise par le dipole peut être réfléchie à ces endroits. En revanche la taille des PML sur les extrémités gauche et droite est plus sensible vue que l'énergie transite essentiellement selon cet axe. Leur efficacité semble très satisfaisante pour une épaisseur de 400 nm soit $\lambda/2$.



FIGURE D.3 – Norme du champ analytique en fonction de la largeur de la fenêtre d'intégration. Mode d'une fibre de permittivité $\varepsilon_2 = 2.25$ dans un milieu d'indice $\varepsilon_1 = 1$. Le rayon de la fibre est de $R_0 = 400$ nm.



FIGURE D.4 – Profil de l'excitation magnétique dans la fibre pour différentes épaisseur de la couche PML en extrémité de fenêtre de calcul.

Bibliographie

- J. Takahara, S. Yamagishi, H. Taki, A. Morimoto, and T. Kobayashi, "Guiding of a one-dimensional optical beam with nanometer diameter," *Opt. Lett.*, vol. 22, pp. 475–447, 1997.
- [2] J. Weeber, A. Dereux, C. Girard, G. Colas des Francs, J. Krenn, and J. Goudonnet, "Optical addressing at the subwavelength scale," *Physical Review E*, vol. 62, pp. 7381–7388, 2000.
- [3] M. Brun, A. Drezet, H. Mariette, N. Chevalier, J. C.Woehl, and S. Huant, "Remote optical addressing of single nano-objects," *Europhysics Letters*, vol. 64, pp. 634–640, 2003.
- [4] S. L. Surbhi Lal and N. Halas, "Nano-optics from sensing to waveguiding," Nature Photonics, vol. 1, pp. 641–648, 2007.
- [5] N. Savage, "Linking with light," spectrum IEEE, vol. 39, pp. 32–36, 2002.
- [6] R. Zia, J. Schuller, A. Chandran, and M. L. Brongersma, "Plasmonics : the next chip-scale technology," *Materials Today*, vol. 9, pp. 20–28, 2006.
- [7] G. Lifante, Integrated Photonics. Wiley, 2003.
- [8] T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi, T. Thio, and P. A.Wolff, "Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays," *Nature*, vol. 391, pp. 667– 669, 1998.
- [9] S. Bozhelvolnyi, *Plasmonic Nanoguides and Circuits*. Pan Stanford, 2009.
- [10] L. Novotny and B. Hecht, Principles of Nano-Optics. Cambridge University Press, 2006.
- [11] K. J. Vahala, "Optical microcavities," *Nature*, vol. 424, pp. 839–846, 2003.
- [12] W. E. Moerner and L. Kador, "Optical detection and spectroscopy of single molecules in a solid," *Physical Review Letters*, vol. 62, pp. 2535–2541, 1989.
- [13] S. W. Hell, "Far-field optical nanoscopy," *Science*, vol. 316, p. 1153, 2007.
- [14] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, , and V. Thierry-Mieg, "Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity," *Physical Review Letters*, vol. 81, pp. 1110–1114, 1998.
- [15] J.-M. Gérard and B. Gayral, "Strong purcell effect for inas quantum boxes in threedimensional solid-state microcavities," *Journal Of Lightwave Technology*, vol. 17, p. 2089, 1999.
- [16] B. Hecht, B. Sick, U. Wild, V. Deckert, R. Zenobi, O. Martin, and D. Pohl, "Scanning near-field optical microscopy with aperture probes : Fundamentals and applications," J. Chem. Phys., vol. 112, no. 18, pp. 7761–7774, 2000.

- [17] R. Bachelot, F. H'Dhili, D. Barchiesi, G. Lerondel, R. Fikri, P. Royer, N. Landraud, J. Peretti, F. Chaput, G. Lampel, J.-P. Boilot, and K. Lahlil, "Apertureless near-field optical microscopy : A study of the local tip field enhancement using photosensitive azobenzene-containing films," *Journal of Applied Physics*, vol. 94, p. 2060, 2003.
- [18] R. Engelen, Y. Sugimoto, Y. Watanabe, J. K. and N. Ikeda, N. van Hulst, K. Asakawa, and L. Kuipers, "The effect of higher-order dispersion on slow light propagation in photonic crystal waveguides," *Optic Express*, vol. 14, p. 1658, 2006.
- [19] A. Dereux, C. Girard, and J. Weeber, "Theoretical principles of near-field optical microscopies and spectroscopies," J. Chem. Phys., vol. 112, pp. 7775–7789, 2000.
- [20] R. Stöckle, C. Fokas, V. Deckert, R. Zenobi, B. Sick, B. Hecht, and U. P. Wild, "High-quality near-field optical probes by tube etching," *Journal Of Applied Physics*, vol. 75, pp. 160–162, 1999.
- [21] D. W. Pohl, W. Denk, and M. Lanz, "Optical stethoscopy : Image recording with resolution lambda/20," Appl. Phys. Lett., vol. 44, pp. 651–653, 1984.
- [22] Y. Inouye and S. Kawata, "Near-field optical microscope with a metallic probe tip," Opt. Lett., vol. 19, pp. 159–161, 1994.
- [23] N. Chevalier, Y. Sonnefraud, J. F. Motte, and S. Huanta, "Aperture-size-controlled optical fiber tips for high-resolution optical microscopy," *Review Of Scientific Ins*truments, vol. 77, p. 063704, 2006.
- [24] S. Enoch and N. Bonod, eds., *Plasmonics*. Springer, 2012.
- [25] P. M. Adam, L. Salomon, F. de Fornel, and J. P. Goudonnet, "Determination of the spatial extension of the surface–plasmon evanescent field of a silver film with a photon scanning tunneling microscope," *Phys. Rev. B*, vol. 48, pp. 2680–2683, 1993.
- [26] J. Nelayah, M. Kociak, O. Stephan, F. G. D. Abajo, M. Tence, L. Henrard, D. Taverna, I. Pasotiza-Santos, L. M. Liz-Marzan, and C. Colliex, "Mapping surface plasmons on a single metallic nanoparticle," *Nature Physics*, vol. 3, pp. 348–354, 2007.
- [27] W. Barnes, A. Dereux, and T. Ebbesen, "Surface plasmon subwavelength optics," *Nature*, vol. 424, pp. 824–830, 2003.
- [28] J.-J. Greffet, "Nanoantennas for light emission," Science, vol. 308, pp. 1561–1563, 2005.
- [29] P. Bharadwaj, B. Deutsch, and L. Novotny, "Optical antennas," Adv. Opt. Phot., vol. 1, pp. 438–483, 2009.
- [30] K. Kneipp, M. Moskovits, and H. Kneipp, eds., Surface-Enhanced Raman Scattering-Physics and Applications. Springer-Verlag, 2006.
- [31] P. Anger, P. Bharadwaj, and L. Novotny, "Enhancement and quenching of singlemolecule fluorescence," *Physical Review Letters*, vol. 96, p. 113002, 2006.
- [32] B. Pettinger, K. Krischer, and G. Ertl, "Giant Raman scattering cross section for an adsorbed dye at ag colloids associated with low em field enhancement," *Chem. Phys. Lett.*, vol. 151, pp. 151–155, 1988.
- [33] L. Novotny, R. X. Bian, and X. S. Xie, "Theory of nanometric optical tweezers," *Physical Review Letters*, vol. 79, pp. 645–648, 1997.
- [34] P. C. Chaumet and M. Nieto-Vesperinas, "Coupled dipole method determination of the electromagnetic force on a particle over a flat dielectric substrate," *Physcal Review B*, vol. 61, p. 11119, 2000.

- [35] M. Mivelle, I. Ibrahim, F. Baida, G. Burr, D. Nedeljkovic, D. Charraut, J.-Y. Rauch, R. Salut, and T. Grosjean, "Bowtie nano-aperture as interface between near-fields and a single-mode fiber," *Optic Express*, vol. 18, p. 16964, 2010.
- [36] C. Ropers, C. C. Neacsu, T. Elsaesser, M. Albrecht, M. B. Raschke, and C. Lienau, "Grating-coupling of surface plasmons onto metallic tips : A nanoconfined light source," *Nano Letters*, vol. 7, pp. 2784–2788, 2007.
- [37] A. Bouhelier, J. Renger, M. R. Beversluis, and L. Novotny, "Plasmon-coupled tipenhanced near-field optical microscopy," *Journal of Microscopy*, vol. 210, pp. 220– 224, 2003.
- [38] E. G. Bortchagovsky, S. Klein, and U. C. Fischer, "Surface plasmon mediated tip enhanced raman scattering," *Applied Physics Letters*, vol. 94, p. 063118, 2009.
- [39] K. Tanaka, G. Burr, T. Grosjean, T. Maletzky, and U. Fischer, "Superfocussing in a metal-coated tetrahedral tip by dimensional reduction of surface-to edge-plasmon modes," *Applied Physics B*, vol. 93, pp. 257–266, 2008.
- [40] R. Vallée, N. Tomczak, E. V. D. H. Gersen, M. Garcia-Parajo, G. Vansco, and N. V. Hulst, "On the role of electromagnetic boundary conditions in single molecule fluo-rescence lifetime studies of dyes embedded in thin films," *Chemical Physics Letters*, vol. 348, pp. 161–167, 2001.
- [41] G. S. Agarwal, *Quantum Optics*. Cambridge University Press, 2012.
- [42] F. D. Stefani, K. Vasilev, N. Bocchio, F. Gaul, A. Pomozzi, and M. Kreiter, "Photonic mode density effects on single-molecule fluorescence blinking," New J. Phys., vol. 9, p. 21, 2007.
- [43] M. Reed, J. Randall, R. Aggarwal, R. Matyi, T. Moore, and A. Wetsel, "Observation of discrete electronic states in a zero dimensional semiconductor nanostruture," *Physcal Review Letter*, vol. 60, pp. 535–540, 1988.
- [44] B. Malher, P. Spinicelli, S. Buil, X. Quelin, J.-P. Hermier, and B. Dubertret, "Towards non-blinking colloidal quantum dots," *Nature materials*, vol. 7, pp. 659–664, 2008.
- [45] M. Nomura, S. Iwamoto, and Y. Arakawa, "A photonic crystal nanocavity laser with ultralow threshold," in SPIE, 2007.
- [46] K. M. Birnbaum, A. Boca, R. Miller, A. D. Boozer, T. E. Northup, and H. J. Kimble, "Photon blockade in an optical cavity with one trapped atom," *Nature*, vol. 436, p. 87, 2005.
- [47] A. Cuche, A. Drezet, Y. Sonnefraud, O. Faklaris, F. Treussart, J.-F. Roch, and S. Huant, "Near-field optical microscopy with a nanodiamond-based single-photon tip," *Optic Express*, vol. 17, p. 19969, 2009.
- [48] R. Marty, A. Arbouet, V. Paillard, C. Girard, and G. Colas des Francs, "Photon antibunching in the optical near-field," *Physical Review B*, vol. 82, p. 081403(R) (4 pages), 2010.
- [49] I. Mallek-Zouari, S. Buil, X. Quélin, B. Mahler, B. Dubertret, and J.-P. Hermier, "Plasmon assisted single photon emission of cdse/cds nanocrystals deposited on random gold film," *Applied Physics Letters*, vol. 97, p. 053109, 2010.
- [50] H. Aouani, O. Mahboub, N. Bonod, E. Devaux, E. Popov, H. Rigneault, T. W. Ebbesen, and J. Wenger, "Bright unidirectional fluorescence emission of molecules in a nanoaperture with plasmonic corrugations," *Nano Letters*, vol. 11, pp. 637–644, 2011.

- [51] O. Mollet, S. Huant, G. Dantelle, T. Gacoin, and A. Drezet, "Quantum plasmonics : Second-order coherence of surface plasmons launched by quantum emitters into a metallic film," *Physcal Review B*, vol. 86, p. 045401, 2012.
- [52] S. Derom, A. Bouhelier, A. Kumar, A. Leray, J. Weeber, S. Buil, X.Quélin, J. Hermier, and G. C. des Francs, "Single-molecule controlled emission in planar plasmonic cavities," *Physcal Review B*, vol. 89, p. 035401, 2014.
- [53] F. D. Stefani, K. Vasilev, N. Bocchio, F. Gaul, A. Pomozzi, and M. Kreiter, "Photonic mode density effects on single-molecule fluorescence blinking," *New Journal* of *Physics*, vol. 9, pp. 1–8, 2007.
- [54] B. Ji, E. Giovanelli, B. Habert, P. Spinicelli, M. Nasilowski, X. Xu, N. Lequeux, J.-P. Hugonin, F. Marquier, J.-J. Greffet, and B. Dubertret, "Non-blinking quantum dot with a plasmonic nanoshell resonator," *Nature nanotechnology*, 2015.
- [55] L. Kien, S. D. Gupta, V. I. Balykin, and K. Hakuta, "Spontaneous emission of a cesium atom near a nanofiber : Efficient coupling of light to guided modes," *Physical Review A*, vol. 72, p. 032509, 2005.
- [56] D. Martin-Cano, L. Martin-Moreno, F. Garcia-Vidal, and E. Moreno, "Resonance energy transfer and superradiance mediated by plasmonic nanowaveguides," *Nano Letters*, vol. 10, pp. 3129–3134, 2010.
- [57] D. Dzsotjan, A. S. Sorensen, and M. Fleischhauer, "Quantum emitters coupled to surface plasmons of a nanowire : A green's function approach," *Physcal Review B*, vol. 82, p. 075427, 2010.
- [58] P. Andrew and W. L. Barnes, "Forster energy transfer in an optical microcavity," *Science*, vol. 290, pp. 785–788, 2000.
- [59] G. Colas des Francs, C. Girard, and O. Martin, "Fluorescent resonant energy transfer in the optical near-field," *Physical Review A*, vol. 67, p. 53805, 2003.
- [60] J. Choquette, K. Marzlin, and B. Sanders, "Superradiance and subradiance and suppressed superradiance of dipoles near a metal interface," *Physical Review B.*, vol. 82, p. 023827, 2010.
- [61] A. Gonzalez-Tudela, D. Martin-Cano, E. Moreno, L. Martin-Moreno, C. Tejedor, and F. J. Garcia-Vidal, "Entanglement of two qubits mediated by one-dimensional plasmonic waveguides," *Physical Review Letters*, vol. 106, p. 020501, 2011.
- [62] G. Chen, N. Lamber, C. Chou, Y. Chen, and F. Nori, "Surface plasmons in a metal nanowire coupled to colloidal quantum dots : Scattering properties and quantum entanglement," *Physical Review B*, vol. 84, p. 045310, 2011.
- [63] K. P. Nayak and K. Hakuta, "Single atoms on an optical nanofibre," New Journal of Physics, vol. 10, p. 053003, 2008.
- [64] D. Chang, A. Sörensen, P. Hemmer, and M. Lukin, "Quantum optics with surface plasmons," *Physical Review Letters*, vol. 97, p. 053002, 2006.
- [65] D. Chang, A. Sörensen, E. Demler, and M. Lukin, "A single-photon transistor using nanoscale surface plasmons," *Nature Physics*, vol. 3, pp. 807–812, 2007.
- [66] A. Gonzalez-Tudela, D. Martin-Cano, E. Moreno, L. Martin-Moreno, C. Tejedor, and F. J. Garcia-Vidal, "Entanglement of two qubits mediated by one-dimensional plasmonic waveguides," *Physical Review Letters*, vol. 106, p. 020501, 2011.
- [67] P. B. Johnson and R. W. Christy, "Optical constants of the noble metals," Phys. Rev. B, vol. 6, pp. 4370–4379, 1972.

- [68] A. Snyder and J. Love, *Optical Waveguide Theory*. Chapman and Hall, 1988.
- [69] D. Chang, A. Sörensen, P. Hemmer, and M. Lukin, "Strong coupling of single emitters to surface plasmons," *Physical Review B*, vol. 76, p. 35420, 2007.
- [70] D. Chang, Controlling atom-photon interactions in nano-structured media. PhD thesis, Harvard University Cambridge, Massachusetts, May 2008.
- [71] G. Colas des Francs, A. Bouhelier, E. Finot, J.-C. Weeber, A. Dereux, C.Girard, and E. Dujardin, "Fluorescence relaxation in the near-field of a mesoscopic metallic particle : distance dependence and role of plasmon modes," *Optics Express*, vol. 16, pp. 17654–17666, 2008.
- [72] A. Archambault, T. V. Teperik, F. Marquier, and J. J. Greffet, "Surface plasmon fourier optics," *Physical Review B*, vol. 79, pp. 195414–1, 2009.
- [73] S. Derom, R. Vincent, A. Bouhelier, and G. Colas des Francs, "Resonance quality, radiative/ohmic losses and modal volume of mie plasmons," *Europhysics Letters*, vol. 98, p. 47008, 2012.
- [74] O. J. Martin, C. Girard, D. Smith, and S. Shultz, "Generalized field propagator for arbitrary finite-size photonic band gap structures," *Physcal Review Letters*, vol. 82, p. 315, 1999.
- [75] G. Colas des Francs, J. Grandidier, S. Massenot, A. Bouhelier, J.-C. Weeber, and A. Dereux, "Integrated plasmonic waveguides : a mode solver based on density of states formulation," *Physical Review B*, vol. 80, p. 115419, 2009.
- [76] F. Pincemin, A. Sentenac, and J. J. Greffet, "Near-field scattered by a dielectric rod below a metallic surface," J. Opt. Soc. Am. A, vol. 11, pp. 1117–1127, 1994.
- [77] A. Castiaux, C.Girard, A. Dereux, O. J. F. Martin, and J.-P. Vigneron, "Electrodynamics in complex systems : Application to near-field probing of optical microresonators," *Physical Review E*, vol. 54, p. 5752, 1996.
- [78] M. Paulus and O. J. F. Martin, "Green's tensor technique for scattering in twodimensional stratified media," *Physical Review E*, vol. 63, p. 066615, 2001.
- [79] G. Colas des Francs, J.-P. Hugonin, and J. Tyroky, "Mode solvers for very thin long range plasmonic waveguides," Opt. Quant. Electron., vol. 10, pp. 558–570, 2010.
- [80] J. Barthes, G. Colas des Francs, A. Bouhelier, J.-C. Weeber, and A. Dereux, "Purcell factor for a point-like dipolar emitter coupled to a two-dimensional plasmonic waveguide," *Physical Review B*, vol. 84, p. 073403, 2011.
- [81] W. Barnes, "Fluorescence near interfaces : the role of photonic mode density," Journal of Modern Optics, vol. 45, pp. 661–699, 1998.
- [82] G. W. Ford and W. H. Weber, "Electromagnetic interactions of molecules with metal surfaces," *Physics Reports*, vol. 113, pp. 195–287, 1984.
- [83] V. V. Klimov, N. Lebedev, and M. Ducloy, "Spontaneous emission rate of an excited atom placed near a nanofiber," *Physical Review A*, vol. 69, p. 013812, 2004.
- [84] G. Colas des Francs, P. Bramant, J. Grandidier, A. Bouhelier, J.-C. Weeber, and A. Dereux, "Optical gain, spontaneous and stimulated emission of surface plasmon– polaritons in confined plasmonic waveguide," *Optics Express*, vol. 18, pp. 16327– 16334, 2010.
- [85] T. Laroche and C. Girard, "Near-field optical properties of single plasmonic nanowires," Applied Physics Letters, vol. 89, p. 233119, 2006.

- [86] T. Laroche, A. Vial, and M. Roussey, "Crystalline structure's influence on the nearfield optical properties of single plasmonic nanowires," *Applied Physics Letters*, vol. 91, p. 123101, 2007.
- [87] H. Ditlbacher, A. Hohenau, D. Wagner, U. Kreibig, M. Rogers, F. F. R. Ausseneg, and J. R. Krenn, "Silver nanowires as surface plasmon resonators," *Physical Review Letters*, vol. 95, p. 257403, 2005.
- [88] M. Song, P. Bramant, A. Bouhelier, J. Sharma, E. Dujardin, D. Zhang, and G. Colas des Francs, "Imaging symmetry-selected corner plasmon modes in penta-twinned crystalline ag nanowires," ACS Nano, vol. 5, pp. 5874–5880, 2011.
- [89] J. Kottmann and O. Martin, "Plasmon resonances of silver nanowires with a nonregular cross section," *Physcal Review B*, vol. 64, p. 235402, 2001.
- [90] C. Zou, F. Sun, C. Dong, X. Chen, J. Cui, Q. Gong, Z. Han, and G. Guo, "Plasmon modes of silver nanowire on a silica substrate," *Applied Physics Letters*, vol. 97, p. 183102, 2010.
- [91] A. Drezet, A. Hohenau, D. Koller, A. Stepanov, H. Ditlbacher, B. Steinberger, F. Aussenegg, A. Leitner, and J. Krenn, "Leakage radiation microscopy of surface plasmon polaritons," *Materials Science and Engineering B*, vol. 149, pp. 220–229, 2008.
- [92] S. Kumar, Coupling of Quantum Emitters in Nanodiamonds to Plasmonic Structures. PhD thesis, University of Denmark, July 2012.
- [93] E. Yablonovitch, "Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics," *Physical Review Letters*, vol. 58, p. 2059, 1987.
- [94] K. Busch, G. V. Freymann, S. Linden, S. Mingaleev, L. Tkeshelashvili, and M. Wegener., "Periodic nanostructures for photonics," *Physics Reports*, vol. 444, p. 101, 2007.
- [95] P. Lodahl, A. F. van Driel, I. S. Nikolaev, A. Irman, K. Overgaag, and D. V. . W. L. Vos, "Controlling the dynamics of spontaneous emission from quantum dots by photonic crystals," *Nature*, vol. 430, p. 654, 2004.
- [96] M. Nomura, S. Iwamoto, and Y. Arakawa, "Photonic crystal nanocavity laser with a single quantum dot gain," *Optic Express*, vol. 17, pp. 15975–15981, 2009.
- [97] Y. N. Chen, G. Y. Chen, D. S. Chuu, and T. Brandes, "Quantum-dot exciton dynamics with a surface plasmon : Band-edge quantum optics," *Physcal Review A*, vol. 79, p. 033815, 2009.
- [98] Y. Chen, T. R. Nielsen, N. Gregersen, P. Lodahl, and J. Mork, "Finite-element modeling of spontaneous emission of a quantum emitter at nanoscale proximity to plasmonic waveguides," *Physical Review B*, vol. 81, p. 125431 (11 pages), 2010.
- [99] J. Barthes, A. Bouhelier, A. Dereux, and G. Colas des Francs, "Coupling of a dipolar emitter into one-dimensional surface plasmon," *Nature Scientific Report*, vol. 3, 2013.
- [100] F. L. Kien, S. utta Gupta, P. Nayak, and K. Hakuta, "Nanofiber-mediated radiative transfer between two distant atoms," *Physcal Review A*, vol. 72, p. 063815, 2005.
- [101] D. Martin-Cano, L. Martin-Moreno, F. J. Garcia-Vidal, and E. Moreno, "Resonance energy transfer and superradiance mediated by plasmonic nanowaveguides," *Nano Letters*, vol. 10, p. 3129, 2010.

- [102] T. H. Taminiau, R. J. Moerland, F. B. Segerink, L. Kuipers, and N. F. van Hulst, "λ/4 resonance of an optical monopole antenna probed by single molecule fluorescence," Nano Lett., vol. 7, pp. 28–33, 2007.
- [103] X.-W. Chen, V. Sandoghdar, and M. Agio, "Highly efficient interfacing of guided plasmons and photons in nanowires," *Nano Letters*, vol. 9, pp. 3756–3761, 2009.
- [104] F. I. Baida and A. Belkhir, "Superfocusing and light confinement by surface plasmon excitation through radially polarized beam," *Plasmonics*, vol. 4, pp. 51–59, 2009.
- [105] W. Ding, S. R. Andrews, and S. A. Maier, "Internal excitation and superfocusing of surface plasmon polaritons on a silver-coated optical fiber tip," *Physical Review A*, vol. 75, p. 063822, 2007.
- [106] L. Novotny and C. Hafner, "Light propagation in a cylindrical waveguide with a complex, metallic, dielectric function," *Phys. Rev. E*, vol. 50, pp. 4094–4106, 1994.
- [107] K. Y. Kim, Guided and Leaky Modes of Circular Open Electromagnetic Waveguides : Dielectric and Plasma and and Metamaterial Columns. PhD thesis, The Graduate School Kyungpook National University, 2004.
- [108] K. Tsakmakidis, A. Boardman, and O. Hess, "'trapped rainbow' storage of light in metamaterials.," *Nature*, vol. 312, pp. 397–401, 2007.
- [109] Y. J. Saling He, Yingran He, "Revealing the truth about 'trapped rainbow' storage of light in metamaterials.," *Scientific Report*, vol. 583, 2012.
- [110] L. Neumann, J. van't Oever, , and N. F. van Hulst, "A resonant scanning dipoleantenna probe for enhanced nanoscale imaging," *Nano Letters*, vol. 11, pp. 5070– 5074, 2013.
- [111] A. E. Eter, N. M. Hameed, F. Baida, R. Salut, C. filiatre, D. Nedeljkovic, E. Atie, and S. B. an T. Grosjean, "Fiber-integrated optical nano-tweezer based on a bowtieaperture nano-antenna at the apex of a snom tip," *Optic Express*, vol. 22, pp. 10072– 10080, 2014.
- [112] T. A. Milligan, Modern antenna design. IEEE press, 2005.
- [113] N. Issa and R. Guckenberger, "Fluorescence near metal tips : the roles of energy transfer and surface plasmon polaritons," *Optics Express*, vol. 15, pp. 12131–12144, 2007.
- [114] E. Devaux, A. Dereux, E. Bourillot, J.-C. Weeber, Y. Lacroute, and J.-P. Goudonnet, "Local detection of the optical magnetic field in the near zone of dielectric samples," *Physcal Review B*, vol. 62, p. 10504, 2000.
- [115] K. Chiang, "Review of numerical and approximate methods for the modal analysis of general optical dielectric waveguides," Opt. Quant. Electron., vol. 26, pp. S113– S134, 1994.
- [116] R. Quidant, J.-C. Weeber, A. Dereux, D. Peyrade, G. Colas des Francs, C. Girard, and Y. Chen, "Addressing and imaging high optical index dielectric ridges in the optical near field," *Physical Review E*, vol. 64, p. 66607, 2001.
- [117] C. Girard, A. Dereux, R. Quidant, G. Colas des Francs, and J.-C. Weeber, "Subwavelength optical devices for nanometer scale applications," *International Journal of Nanoscience*, vol. 1, pp. 63–78, 2002.
- [118] G. Lévêque, R. Mathevet, J. Weiner, G. Colas des Francs, C. Girard, R. Quidant, J.-C. Weeber, and A. Dereux, "Modelling resonant coupling between microring resonators addressed by optical evanescent waves," *Nanotechnology*, vol. 15, pp. 1200– 1210, 2004.

- [119] E. Anemogiannis, E. N. Glytsis, and T. K. Gaylord, "Determination of guided and leaky modes in lossless and lossy planar multilayer optical waveguides : Reflection pole method and wavector density method," *Journal of Lightwave Technology*, vol. 17, pp. 929–941, 1999.
- [120] O. J. F. Martin, A. Dereux, and C. Girard, "An iterative scheme to compute exactly the total field propagating in dielectric structures of arbitrary shapes," J. Opt. Soc. Am. A, vol. 11, pp. 1073–1080, 1994.
- [121] M. Paulus, P. Gay-Balmaz, and O. Martin, "Green's tensor technique for scattering in two-dimensional stratified media," *Physical Review E*, vol. 63, p. 66615, 2001.
- [122] G. Gao, C. Torres-Verdín, and T. Habashy, "Analytical techniques to evaluate the integrals of 3d and 2d spatial dyadic green's functions," *Progress In Electromagnetics Research*, *PIER*, vol. 52, pp. 47–80, 2005.
- [123] A. Yaghjian, "Electric dyadic green's functions in the source region," Proceedings of the IEEE, vol. 68, pp. 248–263, 1980.
- [124] A. Dereux, J. P. Vigneron, P. Lambin, and A. A. Lucas, "Polaritons in semiconductor multilayered materials," *Physical Review B*, vol. 38, pp. 5438–5452, 1988.
- [125] A. Lagendijk and B. Tiggelen, "Resonant multiple scattering of light," *Physics Reports*, vol. 270, pp. 143–215, 1996.
- [126] G. Colas des Francs, C. Girard, J.-C. Weeber, C. Chicanne, T. David, A. Dereux, and D. Peyrade, "Optical analogy to electronic quantum corrals," *Physical Review Letters*, vol. 86, pp. 4950–4953, 2001.
- [127] G. Colas des Francs, C. Girard, and A. Dereux, "Theory of near-field optical imaging with a single molecule as a light source," *Journal of Chemical Physics*, vol. 117, pp. 4659–4666, 2002.
- [128] G. Lévêque, G. Colas des Francs, C. Girard, J.-C. Weeber, C. Meier, C. Robilliard, R. Mathevet, and J. Weiner, "Polarization state of the optical near-field," *Physical Review E*, vol. 65, p. 36701, 2002.
- [129] A. Dereux, C. Girard, C. Chicanne, G. C. Francs, T. Davidand, E. Bourillot, Y. Lacroute, and J. Weeber, "Subwavelength mapping of surface photonic states," *Nanotechnology*, vol. 14, pp. 935–938, 2003.
- [130] M. Abramowitz and I. Stegun, Hanbbook of mathematical functions. Dover Publications, 1972.