



HAL
open science

Contribution à l'étude théorique, numérique et expérimentale des nanoantennes patch optiques

Caroline Lemaître

► **To cite this version:**

Caroline Lemaître. Contribution à l'étude théorique, numérique et expérimentale des nanoantennes patch optiques. Physique [physics]. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2016. Français. NNT : 2016CLF22742 . tel-01980621

HAL Id: tel-01980621

<https://theses.hal.science/tel-01980621>

Submitted on 14 Jan 2019

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.

N° d'Ordre : D.U. 2742

UNIVERSITE BLAISE PASCAL
U.F.R. Sciences et Technologies

ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES
N° 881

THESE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE

Spécialité : Physique

Par : **Caroline LEMAÎTRE**

Master Recherche, Nanostructures et Nanomatériaux

**Contribution à l'étude théorique, numérique et
expérimentale des nanoantennes patch optiques**

Soutenue publiquement le **25 Octobre 2016**, devant la commission d'examen.

Président :	Mme Agnès Maître
Rapporteurs :	Mr. Jérôme Plain
	Mr. Stéphane Larouche
Directeur :	Mr. Emmanuel Centeno
Encadrant :	Mr. Antoine Moreau
Examineur :	Mme Christine Robert-Goumet
Membre invité :	Mme Christelle Varenne

REMERCIEMENTS

Je souhaite tout d'abord remercier Antoine Moreau, mon encadrant de thèse, et Emmanuel Centeno, mon directeur de thèse, pour avoir eu confiance en moi, m'avoir soutenue ces trois années et m'avoir ainsi permise de découvrir le monde de la recherche.

Un énorme merci à Antoine pour son implication dans mon travail et son soutien moral à toute épreuve. J'ai beaucoup apprécié sa disponibilité et sa patience pour répondre à toutes mes questions en dépit des nombreux travaux qui l'occupaient.

Je remercie Emmanuel pour sa confiance et ses conseils avisés tout au long de ma thèse et surtout lors de mes diverses présentations.

Je remercie très sincèrement Jérôme Plain, professeur à l'Université Technologique de Troyes, et Stéphane Larouche, Adjunct Assistant Professor à Duke University (USA), pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce manuscrit. Je tiens aussi à remercier vivement Agnès Maître, Christine Robert-Goumet et Christelle Varenne pour m'avoir fait l'honneur de faire partie du jury.

Durant ces travaux, j'ai été accueillie dans l'équipe ELENA (Electromagnétisme et Nanophotonique) de l'Institut Pascal dont tous les membres pourront trouver dans ces lignes ma reconnaissance. Merci particulièrement à Gérard Granet et à Kofi Edee notamment pour leurs explications sur les changements de coordonnées et les PML (Perfect Multiple Layers).

J'ai aussi eu le privilège de travailler avec d'autres équipes; Je tiens ainsi à exprimer ma gratitude à Christelle, Amadou, Christine, Guillaume et François pour leur temps et leur implication dans mes travaux. Je les remercie vivement pour leurs conseils avisés et les manipulations qu'ils m'ont permise d'entreprendre.

Durant ces trois années, j'ai eu la chance de partager mon bureau, mes pauses café et de très bons moments avec beaucoup de chercheurs, doctorants et stagiaires fabuleux. Un merci particulier à Rémi pour m'avoir aidée dans mes nombreux déboires avec Matlab. Je pense aussi à Mira pour son soutien sans faille et sa bonne humeur. Je remercie aussi Jessica, Fatima, Armel, Edouardo, Aliou, Rabih, Emilien, Paulo, Josselin, Mathieu et Nicolas pour les échanges et discussions que j'ai eus avec eux.

Pour m'avoir soutenue, supportée et surtout reboostée tout au long de ma thèse, je souhaite remercier David, Nastasia, Claire, Thomas, Morgan, Data, Laurent, les Clément, Aymen, Alex, Aurélien, Elissa, Emilie, Rudy, Chris et ceux que je pourrais oublier. Merci à tous pour votre amitié inconditionnelle et vos encouragements.

Je tiens enfin à remercier ma famille et en priorité mes parents et ma sœur sans qui je n'aurais jamais terminé cette thèse ou, en tout cas, avec un esprit aussi sain.

Introduction	5
1 Plasmonique	7
1.1 Les anomalies de Wood	7
1.2 Plasmons de surface	10
1.2.1 Résonance de plasmons de surface	10
1.2.2 Méthodes de couplage optique	15
1.3 Résonance localisée de plasmons de surface	18
1.3.1 Théories expliquant les plasmons localisés	18
1.3.2 Facteurs influençant la résonance	20
1.4 Modes guidés	21
1.4.1 Long range and short range surface plasmons	22
1.4.2 Cas du gap-plasmon	23
2 Résolution modale des équations de Maxwell	27
2.1 Milieux multi-couches	27
2.1.1 Résolution électromagnétique du problème	28
2.1.2 Méthode des matrices de scattering	30
2.1.3 Propagation d'un faisceau dans une multi-couche	32
2.2 Méthodes modales de Fourier pour les structures périodiques	33
2.2.1 Résolution du problème en polarisation TE	35
2.2.2 Résolution en polarisation TM	37
2.3 Stretching et Perfectly Matched Layer	38
3 Contrôle interférométrique de l'absorption	45
3.1 Modélisation des nano-antennes patch	45
3.1.1 Réponse optique de l'antenne patch	45
3.1.2 Contrôle interférentiel	47
3.2 Modèle interférométrique	48
3.2.1 Calcul du champ H_y	49
3.2.2 Calcul du champ \vec{E}	52
3.2.3 Pertes associées à la résonance	55
3.2.4 Contrôle interférométrique à la résonance	58
3.3 Simulations	60
3.3.1 Cartes de champ	61
3.3.2 Spectres d'absorption et de réflexion	63

4	Transmission à travers un film métallique	69
4.1	Étude numérique	70
4.2	Fabrication	72
4.2.1	Dépôt de la couche d'or	72
4.2.2	Fabrication d'une couche de diélectrique et dépôt des nanocubes	78
4.3	Caractérisation	80
4.3.1	Microscopie Électronique à Balayage (MEB)	80
4.3.2	Réponse optique	82
4.3.3	Spectres en réflexion et en transmission	83
4.3.4	Discussion	84
	Conclusion	89

Depuis la fin des années 60, on s'est aperçu que les métaux offraient des possibilités insoupçonnées pour manipuler la lumière. On a commencé à comprendre que l'on pouvait exciter des modes guidés particulier à la surface des métaux, les plasmons de surface, et que cette possibilité avait un lien très direct avec les résonances de nanoparticules qu'on appelle souvent des plasmons de surface localisés. Très vite, on a su se servir des plasmons de surface pour créer des détecteurs très sensibles de molécules d'intérêt biologique, qui sont aujourd'hui l'application majeure de ce domaine qu'on appelle la plasmonique. Petit à petit, on a étudié les modes de structures de plus en plus complexe. On a imaginé mettre à profit les modes guidés plasmoniques pour des applications complètement nouvelles, comme transporter de l'information ou même détruire des cellules cancéreuses grâce à des nanoparticules chauffées par laser. Ces efforts n'ont pas encore porté leurs fruits.

En 2007, grâce à Bozhevolnyi[1], un mode particulier aux propriétés surprenantes est identifié : le gap-plasmon. Ce mode, comme le plasmon de surface auquel il est apparenté, est responsable de résonances elles-même très particulières dans des structures comportant des interstices de quelques nanomètres et, de plus, très courts (quelques dizaines de nanomètres). Ce qui est étonnant, c'est que ces résonances puissent être excitées par la lumière incidente vu la dimension extrêmement réduite des structures mises en jeu. Mieux, elles sont même très efficaces pour concentrer la lumière, l'absorber ou la diffuser. Il y a deux méthodes de fabrication pour les structures à gap-plasmons : la lithographie et l'auto-assemblage. La lithographie consiste à graver à des échelles sub-longueurs d'onde des structures métalliques. Elle permet de bien contrôler la répartition des résonateurs, mais pas de couvrir de grandes surfaces. Grâce à ce type de structure, on peut contrôler jusqu'au front d'onde de la lumière réfléchi et envisager de fabriquer ainsi des hologrammes en réflexion. La seconde méthode repose sur l'assemblage de nanopatches métalliques sur un film diélectrique reposant sur un film métallique. Étant donné la taille extrêmement réduite des résonateurs, c'est celle qui donne de meilleurs résultats dans le visible. Ces résonateurs offrent de plus des possibilités inouïes pour accélérer l'émission de lumière[2], par exemple. Cette technique est une conséquence inattendue des progrès de ces dix dernières années en synthèse chimique de nanoparticules de géométrie contrôlée : les nanocubes synthétisés chimiquement forment des nanopatches d'une géométrie quasi parfaite.

C'est donc dans ce cadre que s'inscrit ma thèse. Elle part de l'idée que les propriétés de ces résonateurs peuvent mieux se comprendre si l'on considère que la lumière arrive des deux côtés du patch de façon synchronisée. J'ai donc d'une part essayé de trouver un modèle qui permette de formaliser cette idée pour lui donner une portée prédictive - et de façon quantitative. Pour y arriver, il a fallu, étant donné les différences d'échelles à considérer, des techniques numériques

adaptées. Il a fallu résoudre prudemment les problèmes numériques qui se posaient pour baser solidement la théorie. C'est d'ailleurs en comparant à des simulations numériques directes que nous avons pu valider notre approche.

Au cours de ma thèse, l'accès à des nanocubes est devenu plus aisé. La demande pour ces nanoparticules a paru suffisante à une entreprise pour les proposer à la vente. Cela m'a conduit à donner une coloration expérimentale à ma thèse. Avec le concours de différentes équipes de l'Institut Pascal, en cherchant à apprendre moi-même leurs techniques de fabrication et de caractérisation, j'ai pu disperser des cubes sur des films métalliques d'or recouverts d'un polymère permettant un contrôle poussé de son épaisseur.

Ce manuscrit est articulé en quatre grands chapitres. Dans le premier chapitre, j'ai voulu donner un contexte historique et bibliographique à mes travaux, en remontant jusqu'au début du vingtième siècle. C'est l'époque à laquelle on situe le début des problématiques liées à la plasmonique, même si on savait utiliser des nanoparticules (en l'ignorant) dès l'antiquité. Cette présentation permet de mieux comprendre comment les gap-plasmons ont émergé presque naturellement et comment ils ont pris de l'importance dans le domaine. Dans un deuxième chapitre, j'exposerai en détail les méthodes numériques que j'ai codées puis utilisées pour pouvoir simuler le comportement optique des structures étudiées et pour fournir à mon modèle les paramètres nécessaires. Dans le troisième chapitre, je montrerai à l'aide d'un modèle que les nano-antennes patch peuvent effectivement être décrites comme des cavités pour les gap-plasmons excités des deux côtés et que cette idée peut permettre des prédictions quantitatives. Enfin, dans le dernier chapitre, je présenterai la structure que nous avons choisi de réaliser pour augmenter la transmission de lumière à travers un film métallique grâce à des résonateurs à gap-plasmons. Je détaillerai les moyens expérimentaux que j'ai mis en œuvre et je discuterai les raisons qui ont fait que le succès ne soit pas encore tout à fait au rendez-vous.

Depuis les débuts de l'optique géométrique, l'homme a cherché à contrôler la lumière. Grâce à l'avènement de nouveaux procédés de nanofabrication, notamment issus de l'industrie électronique, on a pu modeler la matière à des échelles de plus en plus petites. Ces quelques dernières dizaines d'années, la communauté a tenté de tirer parti de ces capacités pour contrôler encore mieux la lumière. On peut utiliser des matériaux diélectriques pour ce faire, mais les métaux, malgré leurs pertes, offrent des possibilités encore plus étendues. Dans ce contexte un nouveau domaine de l'optique est apparu : la plasmonique[3]. Les enjeux de ce domaine sont d'arriver à contrôler la lumière grâce à des nanostructures métalliques.

Le contrôle des ondes électromagnétiques en plasmonique passe par l'excitation d'ondes guidées que nous appellerons des modes. Ces modes sont des solutions particulières des équations de Maxwell, sans source à proprement parler. Ils peuvent se trouver le long d'une surface, sur des particules ou encore le long de films métalliques ou diélectriques. Leur excitation explique que ces structures puissent résonner. C'est grâce à cette propriété qu'on espère pouvoir absorber, diffuser, bref mieux contrôler la lumière. Dans ce chapitre, nous reviendrons sur la découverte de ces différents modes puis sur les théories physiques mises en place pour expliquer ces phénomènes physiques nouveaux pour l'époque. Ensuite, nous ferons un tour d'horizon de différents modes guidés existants et des résonances qu'ils suscitent.

Ces ondes étant des modes de surface ou proches d'interface, ils sont donc très sensibles à toute modification des milieux environnants. Leur importance pour la recherche est en grande partie due à leur capacité à amplifier considérablement le champ électrique et à le confiner ou le guider. Cela peut conduire à un grand nombre d'applications dont la principale reste pour l'instant les capteurs biochimiques.

1.1 Les anomalies de Wood

Au début des années 1900, Robert Williams Wood commence à travailler sur les réseaux de diffraction. En étudiant les spectres de faisceaux lumineux diffractés par un réseau, il remarque des phénomènes inattendus. Ayant illuminé un réseau avec une source de lumière blanche (lampe à incandescence), il pensait obtenir un spectre continu. Cependant, il constate de grandes variations d'intensité pour de faibles variations de la longueur d'onde[4] (inférieures à la distance entre les deux raies du sodium). En effet, pour certaines longueurs d'ondes, le spectre chute brusquement en intensité avant de remonter aussi brutalement. Dans ce temps-là, personne ne

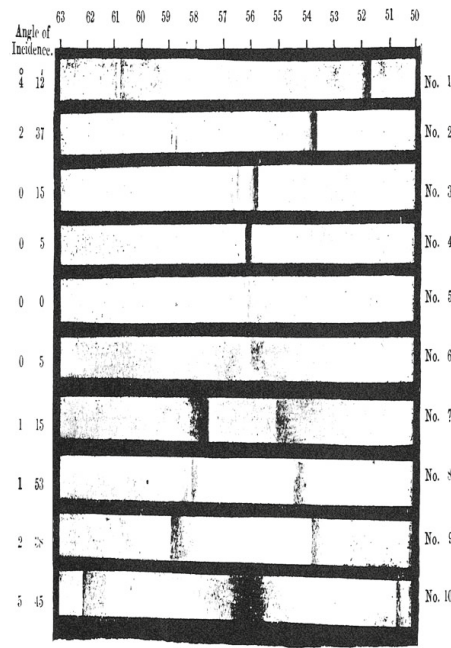


FIGURE 1.1 – Photographie du spectre de la diffraction de lumière blanche par un réseau à différents angles incidents (image extraite de l'article de R. W. Wood de 1902)

trouve d'explication physique à ces phénomènes allant contre les prédictions des théories de diffraction de l'époque. C'est pourquoi Wood les désigne comme des « anomalies singulières ». Dans son article, Wood remarque que l'apparition de ces anomalies est dépendante de la polarisation de la lumière incidente. En effet, les anomalies disparaissent en polarisation TE (lorsque le champ électrique est parallèle au réseau). De plus, certaines d'entre elles peuvent être modulées en frottant ou non la surface du réseau. On peut voir ces anomalies nommées « anomalies de Wood » sur la figure 1.1 présentée dans l'article de Wood datant de 1902, où les spectres sont représentés en fonction de l'angle d'incidence de la lumière (de $4^{\circ}12'$ en haut à $-5^{\circ}45'$ en bas). Par exemple, sur cette image, on peut observer une diminution d'intensité (bande noire) à une longueur d'onde d'environ 518-519 nm pour un angle d'incidence de $4^{\circ}12'$ (premier spectre en haut).

Dès leur apparition, ces anomalies ont créées une émulation au sein de la communauté de l'optique. Durant près de cinquante ans, les physiciens spécialisés ont cherché à expliquer ces phénomènes. Le premier à proposer une formule théorique prédisant la position de certaines anomalies est Lord Rayleigh en 1907 [5, 6]. Il annonce que ces anomalies dans les spectres se produisent aux longueurs d'ondes correspondant à la transformation d'un ordre de diffraction évanescents en un ordre propagatif ou inversement. Cela se produit lorsqu'une onde diffusée émerge tangentiellement à la surface du réseau. En partant de la célèbre formule sur les réseaux $\sin(\theta_n) = \sin(\theta) + n\lambda/d$, Rayleigh explique que ces longueurs d'onde suivent la formule suivante pour l'ordre de diffraction n :

$$n\lambda/d = -\sin(\theta) \pm 1, \text{ avec } n = \pm 1, \pm 2, \pm 3... \quad (1.1)$$

Dans ces formules θ est l'angle d'incidence, θ_n l'angle de diffraction, λ la longueur d'onde dans le vide (qui peut aussi être considérée comme la longueur d'onde dans l'air) et d la période du réseau. Rayleigh prévoit que ces anomalies ne se produisent que si le champ est polarisé en TM (lorsque le champ électrique est perpendiculaire au réseau). S'il est polarisé en TE, le comportement à ces longueurs d'onde sera normal. Par le biais d'une correspondance avec Wood, Rayleigh obtient les paramètres utilisés lors des expériences de Wood. Il existe une différence

de 5% entre ses prédictions et les résultats expérimentaux. Cependant, Rayleigh explique cette différence par le manque de précision de la mesure de la période du réseau et valide ainsi son hypothèse.

Pendant une trentaine d'année, personne n'a remis en cause la conjecture de Rayleigh. Pourtant certaines observations expérimentales ne concordaient pas totalement avec cette théorie. En effet, Strong[7] mesure les anomalies pour des réseaux de même période mais de matériaux différents. Il montre que le métal utilisé pour fabriquer le réseau modifie la forme mais aussi la localisation des anomalies. En se référant seulement à la formule de Rayleigh qui est purement géométrique, cette influence du métal ne peut s'expliquer. De plus, Wood suggère la possibilité que des anomalies TE puissent exister[8]. Plus tard, Palmer[9, 10] prouve l'existence de ces anomalies de type TE. Elles apparaissent lorsque les réseaux utilisés sont gravés profondément. On peut donc dire que les prédictions de Rayleigh ne suffisent pas à expliquer le comportement des anomalies de Wood.

Pour apporter une réponse à ces comportements, Fano envisage dès 1938 l'existence d'ondes se propageant à la surface du réseau. C'est le premier pas vers l'explication théorique de ces phénomènes. Dans son article[11], il distingue deux types d'anomalies :

- une anomalie pointue à une longueur d'onde bien définie du spectre. Cette longueur d'onde correspond à celle prédit dans la formule de Rayleigh.
- une anomalie plus étalée en longueurs d'onde allant de la longueur d'onde où apparaît le premier type d'anomalie vers les longueurs d'onde plus grandes (vers le rouge). Cette anomalie serait généralement composée d'un minimum suivi d'un maximum d'intensité c'est-à-dire d'une bande sombre puis d'une bande brillante.

Fano explique le décalage de 5% entre les manipulations de Wood et les calculs de Rayleigh en disant que Wood observe l'anomalie diffuse (second type) alors que Rayleigh prédit l'emplacement de l'anomalie pointue. Concernant les anomalies diffuses, Fano parle de résonance forcée d'une onde fuyante le long du réseau. En 1956, Pines[12] étudie les pertes subies lors de la diffraction des électrons sur une surface métallique. Il explique ces pertes par une oscillation collective des électrons libres de la surface. En utilisant une analogie avec les oscillations de plasma dans la décharge d'un gaz, il appelle le quantum de l'excitation collective plasmon. Ces deux phénomènes sont les mêmes et en électromagnétisme, le terme plasmon de surface restera pour nommer l'onde de surface supportée par le réseau ou la surface métallique.

À partir du milieu des années 60, grâce au développement d'outils de calculs informatiques et à la mise en place de théories précises de la diffraction, des avancées ont pu être faites afin de simuler la réaction de réseaux à un faisceau de lumière incident. En 1965, Hessel et Oliner[13] utilisent des outils numériques afin de calculer l'emplacement et la forme des anomalies. Leurs calculs sont basés sur les champs électriques et magnétiques le long d'un ligne droite au-dessus du réseau. Eux aussi distinguent deux types d'anomalies : des anomalies classiques suivant la théorie de Rayleigh et des anomalies dites « anomalies de résonance ». Ils associent ces dernières à l'excitation d'une onde de surface. Ils arrivent à expliquer certaines propriétés de ces anomalies comme leur existence en polarisation TE pour des réseaux profondément gravés. Cependant, leurs simulations ne sont pas rigoureusement identiques à la réalité et ne peuvent représenter parfaitement ce qu'il se passe.

Avec l'amélioration du pouvoir de calcul des ordinateurs au début des années 70, plusieurs théoriciens mettent en place une théorie vectorielle rigoureuse des réseaux. Dans le même temps, les avancées technologiques dans le domaine des lasers entraînent la construction de réseaux ayant une période inférieure au micromètre. Ces deux révolutions permettent de faire des études

numériques et des expérimentations poussées des anomalies de Wood et mènent pour la première fois à la concordance entre les résultats expérimentaux et des calculs numériques[14]. Cette théorie, capable de prédire avec précision les diverses propriétés d'un réseau métallique, a été mise en place en 1972 par Maystre[15, 16]. Par la suite, Maystre et son équipe[17, 18] montrent que, mathématiquement, les anomalies de résonance correspondent aux solutions des équations de Maxwell à l'interface du réseau lorsqu'il n'y a aucune excitation extérieure. Avec leur théorie, ils distinguent trois types d'anomalies :

- les anomalies ayant lieu aux longueurs d'onde de Rayleigh ;
- les anomalies de plasmons qui sont générées lorsqu'une onde de surface correspondant à un plasmon de surface du réseau est excitée ;
- les dernières anomalies apparaissent lorsqu'un film diélectrique est déposé sur le réseau métallique. Elles correspondent aux modes de résonance guidés dans le film diélectrique.

Les deux dernières anomalies sont en fait deux cas différents des anomalies de résonance présentées par Hessel et Oliner.

Les anomalies de Wood découvertes en 1902 n'ont trouvé leur explication théorique que dans les années 1970. Certaines anomalies se produisent lorsqu'un ordre de diffraction apparaît de manière tangente à la surface du réseau. D'autres proviennent de l'excitation d'une onde de surface appelée plasmon de surface. Les dernières correspondent à l'excitation d'une onde guidée dans un film diélectrique. Un nouveau domaine, celui de l'étude des modes guidés à proximité des métaux, qui présentent des caractéristiques physiques uniques, est en train de naître : la plasmonique.

1.2 Plasmons de surface

La première visualisation expérimentale de ces plasmons de surface remonte à 1902 lors d'une expérience sur les réseaux par Wood. Ils correspondent aux anomalies présentées par Wood. Les plasmons de surface sont des ondes électromagnétiques qui se propagent le long d'une interface entre un métal et un diélectrique. Ils sont issus de l'oscillation collective des électrons libres du métal à la surface. Cette idée a d'abord été avancée par Pines puis ensuite modélisée par Ritchie[19]. Un plasmon de surface peut être interprété comme des boucles de courant se propageant juste sous la surface, ce qui explique la direction du champ magnétique associé notamment (voir figure 1.2) et permet de mieux comprendre aussi l'apparition d'un champ électrique qui va mettre les électrons en mouvement un peu plus loin et permettre à la boucle de se propager. L'étude des plasmons se nomme la plasmonique. Cette branche de la physique est assez récente et suscite depuis une vingtaine d'années un intérêt qui ne fait que croître. Cet intérêt vient du fait que les plasmons possèdent des propriétés nouvelles qui permettent de contrôler la lumière à une échelle nanométrique. Ces propriétés laissent entrevoir un grand nombre d'applications possibles dont entre autres des capteurs biologiques optiques.

1.2.1 Résonance de plasmons de surface

Les plasmons de surface n'existent que dans certaines circonstances précises et seulement en polarisation TM. Dans cette partie, nous verrons pourquoi ces plasmons n'apparaissent que sous certaines conditions mais aussi les grandeurs caractéristiques utiles aux applications et enfin les différents moyens existants pour exciter ces plasmons.

Condition d'existence des plasmons

Pour appréhender les conditions d'existence de ces plasmons, nous allons étudier une interface entre de milieux semi-infinis, un métal et un diélectrique. Ces deux matériaux sont non-magnétiques, homogènes et isotropes. Pour définir le métal, nous choisirons d'utiliser le modèle de Drude développé en 1900 par Paul Drude[20]. Ce modèle considère les électrons de conduction du métal comme un gaz d'électrons libres. Selon ce modèle, la permittivité du métal, ϵ_m est de la forme :

$$\epsilon_m = \epsilon'_m + i\epsilon''_m = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma)} \quad (1.2)$$

où ω_p est la fréquence plasma du métal qui définit la fréquence d'oscillation des électrons du métal, ω est la pulsation de l'excitation à laquelle le métal est soumis et Γ représente le facteur d'amortissement qui exprime la manière dont l'onde électrique se dissipe. Le diélectrique a une permittivité ϵ_d . L'interface séparant les deux milieux est placée en $z = 0$ (voir figure 1.2).

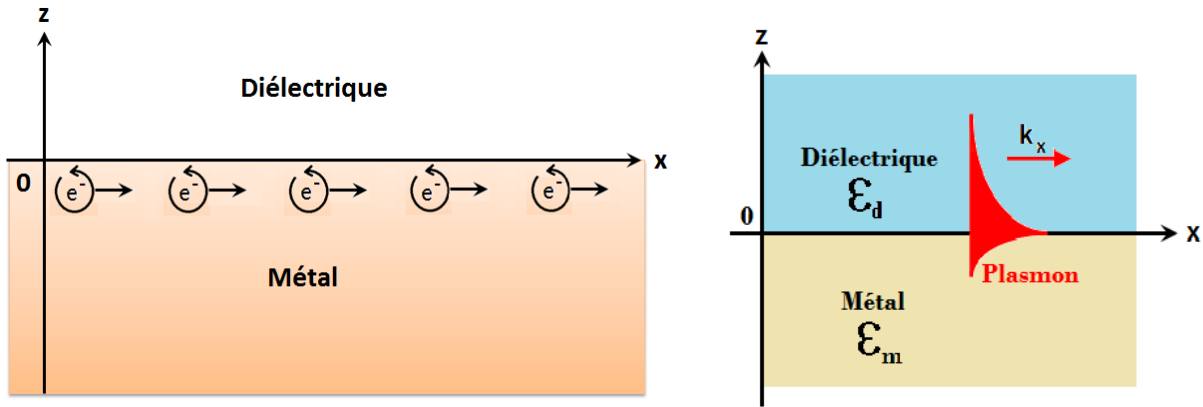


FIGURE 1.2 – À gauche, oscillations des électrons de surface et à droite, profil du champ d'un plasmon de surface à l'interface entre un métal et un diélectrique

Les plasmons sont les modes solutions des équations de Maxwell sans source extérieure pour une interface diélectrique/métal. Ainsi les champs magnétiques les représentant à l'interface sont solutions de l'équation classique de propagation des ondes suivante :

$$\Delta H_y + \epsilon k_0^2 H_y = 0 \quad \text{où } k_0 = \frac{\omega}{c} \quad (1.3)$$

Les solutions évanescentes dans les deux milieux sont de la forme :

$$H_y = \begin{cases} A_d e^{-\alpha_d z} e^{i(k_x x - \omega t)} & \text{si } z > 0 \text{ (diélectrique)} \\ A_m e^{\alpha_m z} e^{i(k_x x - \omega t)} & \text{si } z < 0 \text{ (métal)} \end{cases} \quad (1.4)$$

où les termes $\exp(-\alpha_d z)$ et $\exp(-\alpha_m z)$ produisent une atténuation exponentielle de l'onde dans les deux milieux qui devient ainsi évanescente. Le terme portant la propagation le long de l'interface est le terme $\exp(ik_x x)$. La forme des champ électrique est la même. Dans ces équations, $\alpha_d = \sqrt{k_x^2 - \epsilon_d k_0^2}$ et $\alpha_m = \sqrt{k_x^2 - \epsilon_m k_0^2}$ avec $k_0 = \frac{\omega}{c}$. Ces deux valeurs sont donc positives.

En polarisation TM (lorsque le champ H incident est perpendiculaire au plan d'incidence et parallèle à l'interface), à l'interface, les conditions de continuité imposent l'égalité des champs H_y et E_x des deux milieux en $z = 0$. En réutilisant les équations de Maxwell, la continuité du champ E_x peut être remplacé par une équation de continuité sur les dérivées par rapport à z du champ H_y divisé par la permittivité de chaque milieu. Ainsi, l'existence des plasmons est déterminé ce système d'équations suivants :

$$\begin{cases} H_{y,d} - H_{y,m} = 0 \\ \frac{\alpha_d}{\epsilon_d} H_{y,d} + \frac{\alpha_m}{\epsilon_m} H_{y,m} = 0 \end{cases} \quad (1.5)$$

Ainsi, un plasmon ne peut exister que si le déterminant de ce système est nul donc si et seulement si :

$$\frac{\alpha_m}{\epsilon_m} + \frac{\alpha_d}{\epsilon_d} = 0 \quad (1.6)$$

Sachant que la permittivité d'un diélectrique est positive alors que celle d'un métal est négative, la condition d'existence en polarisation TM impose que α_d et α_m aient le même signe, or ils sont tous deux positifs. Ainsi, les plasmons peuvent exister en polarisation TM. Par contre, en polarisation TE (lorsque le champ E incident est perpendiculaire au plan d'incidence et donc parallèle à l'interface), la condition d'existence donnée par l'équation 1.6 devient $\alpha_d = -\alpha_m$. Or α_m et α_d sont positifs donc les plasmons ne peuvent exister en polarisation TE.

Courbe de dispersion

À partir de l'équation 1.6 donnant la condition d'existence des plasmons et en utilisant le modèle de Drude, nous pouvons obtenir la relation de dispersion correspondante des plasmons :

$$k_x = k'_x + ik''_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_d \epsilon'_m}{\epsilon_d + \epsilon'_m}} + i \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_d \epsilon'_m}{\epsilon_d + \epsilon'_m} \right)^{3/2} \frac{\epsilon''_m}{2\epsilon'^2_m} \quad (1.7)$$

Avec cette relation de dispersion, il est possible de tracer une courbe de dispersion (voir figure 1.3). Sur cette courbe, nous traçons deux relations de dispersion. En rouge, la dispersion d'une onde lumineuse incidente dans le vide ou dans l'air et en bleu, la dispersion des plasmons de surface à l'interface entre un métal et de l'air. Les courbes de dispersion permettent de déterminer les possibilités de couplage entre les différents modes. Un couplage entre le plasmon de surface et l'onde incidente n'est possible que si la courbe de dispersion du plasmon de surface passe au dessus de celle des ondes planes dans l'air. Si la courbe de dispersion du plasmon est en dessous, cela signifie que comme le vecteur d'onde k_x est conservé, alors il n'est jamais assez grand en venant de l'air pour exciter le plasmon de surface. Nous verrons dans la section 1.2.2 comment il est possible d'augmenter le vecteur d'onde k_x d'une onde lumineuse pour une même fréquence et permettre ainsi le couplage entre une onde lumineuse et un plasmon.

Échelles caractéristiques des plasmons

Afin de pouvoir utiliser des plasmons pour des applications optiques ou encore dans des biocapteurs, il faut être capable de les caractériser. Grâce à la relation de dispersion des plasmons, il est possible de retrouver les grandeurs caractéristiques des plasmons qui définissent la possibilité de leur utilisation dans des dispositifs optiques (voir figure 1.4).

La première de ces grandeurs est la longueur d'onde $\lambda_{plasmon}$ associée au plasmon :

$$\lambda_{plasmon} = \frac{2\pi}{k'_x} = \lambda_0 \sqrt{\frac{\epsilon_d + \epsilon'_m}{\epsilon_d \epsilon_m}} \quad (1.8)$$

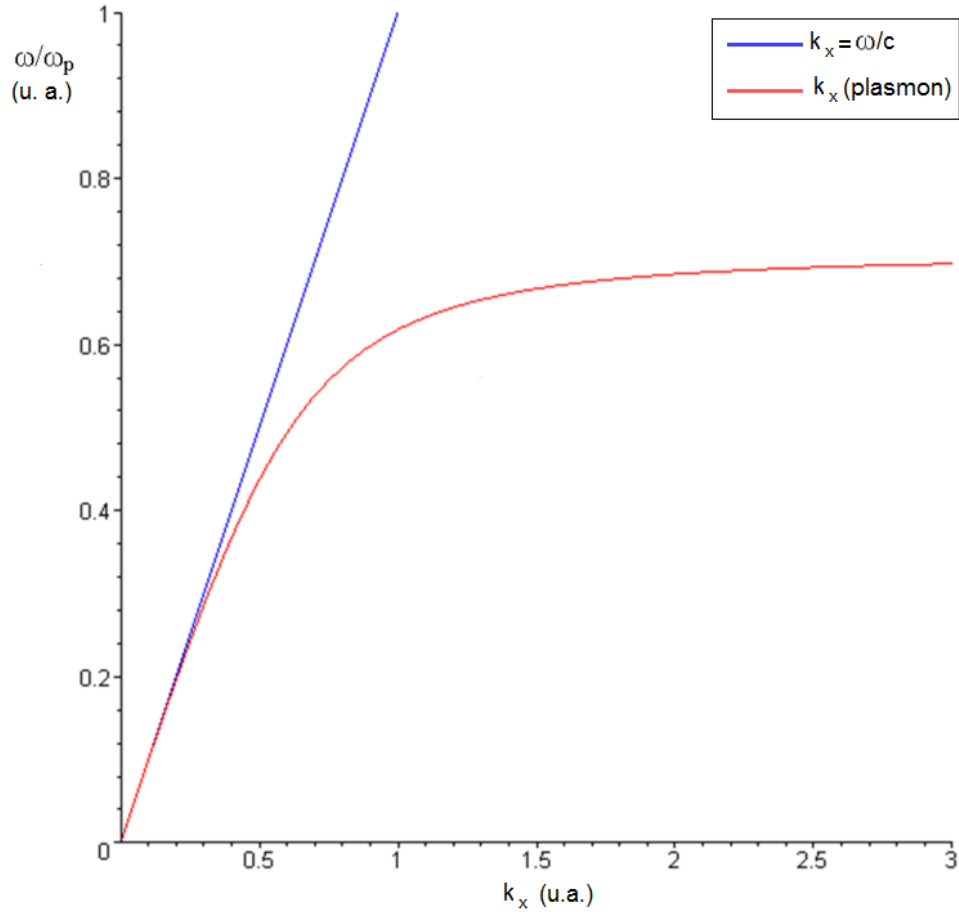


FIGURE 1.3 – Courbes de dispersion d’une onde lumineuse dans le vide (en rouge) et d’un plasmon de surface avec le modèle de Drude (en bleu)

Cette longueur d’onde représente la période d’oscillation des électrons du métal. On peut voir avec l’équation 1.8 que la longueur d’onde du plasmon est toujours légèrement plus petite que la longueur d’onde dans le vide de l’onde lumineuse associée à son excitation.

Une autre grandeur caractéristique est la longueur de propagation δ_x du plasmon le long de la surface. Cette longueur correspond à la longueur parcourue par le plasmon avant que son énergie n’ait diminué d’un facteur $1/e$. L’amplitude du champ décroît du fait des pertes dans le métal. Cette diminution s’effectue de manière exponentielle. Cette longueur peut être mesurée à partir de la partie imaginaire du vecteur d’onde :

$$\delta_x = \frac{1}{2k_x''} = \lambda_0 \frac{\epsilon_m'^2}{2\pi\epsilon_m''} \left(\frac{\epsilon_d + \epsilon_m'}{\epsilon_d\epsilon_m'} \right)^{3/2} \quad (1.9)$$

Si on considère une partie réelle de la permittivité du métal bien plus grande que celle d’un diélectrique ($|\epsilon_m'| > \epsilon_d$), ce qui est le cas pour l’or ou l’argent dans le visible par exemple, il est possible d’approximer cette longueur :

$$\delta_x \approx \lambda_0 \frac{\epsilon_m'^2}{2\pi\epsilon_m''} \quad (1.10)$$

Il est important de pouvoir mesurer cette longueur puisqu’elle détermine la résolution spatiale utilisables pour les dispositifs optiques ou les biocapteurs et donc leur taille. Cette longueur peut être augmentée par l’utilisation d’un métal présentant de faibles pertes c’est-à-dire ayant une

permittivité avec une grande partie réelle négative et une partie imaginaire faible. En général, dans le visible et le proche infrarouge, cette longueur est de l'ordre de quelques centaines de micromètres.

L'intensité du champ représentant le plasmon diminue aussi de manière exponentielle selon la direction perpendiculaire à l'interface dans chacun des matériaux. Cette décroissance est caractérisée par la profondeur de pénétration ou épaisseur de peau qui définit la distance en partant de l'interface pour que l'amplitude du champ diminue d'un facteur $1/e$. En supposant que $|\epsilon'_m| > |\epsilon''_m|$, nous pouvons exprimer la profondeur de pénétration du plasmon dans le diélectrique et dans le métal à partir de la partie imaginaire du vecteur d'onde :

$$\delta_d = \frac{1}{2|k''_{z,d}|} = \frac{1}{k_0} \left| \frac{\epsilon_d + \epsilon'_m}{\epsilon_d^2} \right|^{1/2} \quad (1.11)$$

$$\delta_m = \frac{1}{2|k''_{z,m}|} = \frac{1}{k_0} \left| \frac{\epsilon_d + \epsilon'_m}{\epsilon_m'^2} \right|^{1/2} \quad (1.12)$$

La profondeur de pénétration dans le diélectrique est de l'ordre de quelques dizaines voire centaines de nanomètres. Cette longueur nous donne l'épaisseur de diélectrique à travers laquelle le plasmon est sensible à un changement d'indice de réfraction ou à la présence de molécules biologiques. L'épaisseur de peau dans le métal est de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres (environ 25 nm dans le visible). Plus cette longueur est grande, plus le déplacement du plasmon est ralenti. L'expansion spatiale de l'onde plasmonique étant plus importante dans le diélectrique que dans le métal cela signifie que le plasmon est plus sensible aux propriétés optiques du diélectrique.

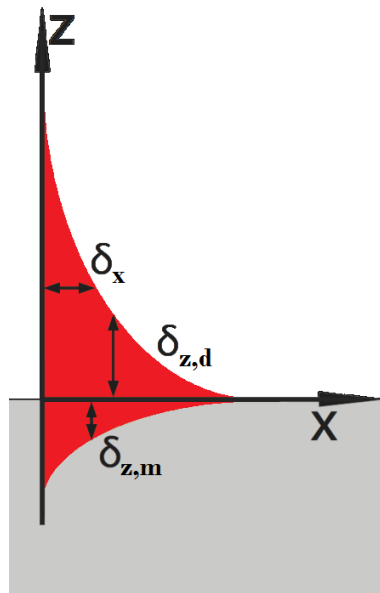


FIGURE 1.4 – Schéma d'un plasmon avec ses longueurs caractéristiques

Ici, nous venons de montrer qu'un plasmon ne peut exister qu'en polarisation TM et qu'il est impossible d'exciter un plasmon en éclairant directement la surface avec une onde lumineuse quelle qu'elle soit. Il a donc fallu mettre au point diverses techniques de couplage pour réussir à exciter ces plasmons. Nous allons maintenant détailler ces systèmes de couplage.

1.2.2 Méthodes de couplage optique

Comme nous l'avons vu sur la figure 1.3, la courbe de dispersion du plasmon est en dessous du cône de lumière délimité par la courbe de dispersion de la lumière dans l'air. Il est donc impossible d'exciter un plasmon directement avec une onde lumineuse se propageant dans le diélectrique. Il faut donc trouver des méthodes de couplage en augmentant le vecteur d'onde des ondes lumineuses incidentes pour une même fréquence. Elles peuvent être basées sur l'utilisation d'un prisme d'indice élevé par exemple ou encore par l'introduction d'irrégularités sur la surface.

Coupleur à prisme

Les deux premières méthodes de couplage pour les plasmons de surface ont été introduites en 1968. Ces deux méthodes reposent sur la Réflexion Totale Atténuée (ATR) d'une onde lumineuse à travers un prisme. La réflexion totale d'un faisceau sur le prisme avec un angle d'incidence θ_i supérieur ou égal à l'angle critique produit une onde évanescente dans le milieu adjacent au prisme. L'onde évanescente créée possède un vecteur d'onde plus grand que celui de l'onde incidente dont l'expression est :

$$k_x = nk_0 \sin \theta_i = n \frac{\omega}{c} \sin \theta_i \quad (1.13)$$

Si une interface métal/air ou air/métal est assez proche du prisme, l'onde évanescente peut avoir une amplitude assez grande pour pouvoir exciter un plasmon à l'interface ayant le même vecteur d'onde.

Les deux méthodes sont basées sur deux configurations différentes. La première a été proposée par Otto. Pour cette configuration, le prisme est plongé dans l'air et est approché de l'interface jusqu'à une distance sub-longueur d'onde pour permettre le couplage entre l'onde évanescente et le plasmon. L'excitation est très sensible à un changement dans l'épaisseur de diélectrique entre le prisme et le métal. Cela explique que cette configuration n'est pas très usitée.

La seconde configuration, qui est celle utilisée en général, a été présentée par Kretschmann et Raether. Elle est plus simple à mettre en œuvre étant donné que le prisme se trouve cette fois du côté métallique. Il n'est donc plus nécessaire de contrôler la distance entre le prisme et l'interface, il suffit de déposer une fine couche métallique sur le prisme. L'épaisseur de cette couche doit néanmoins être ajustée très précisément de manière à ce que le couplage soit le plus efficace possible. Les deux configurations sont représentées sur la figure 1.5

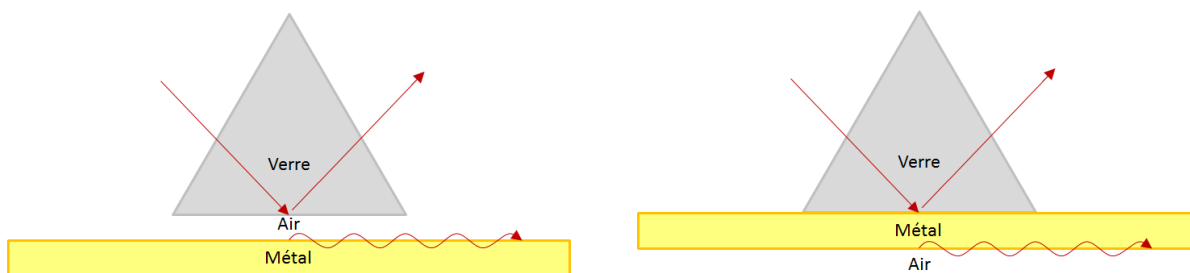


FIGURE 1.5 – Configurations d'Otto (à gauche) et de Kretschmann-Raether (à droite)

En reprenant les relations de dispersion dans chaque milieu et à chaque interface, il est possible de montrer sur les courbes de dispersion que le couplage existe (voir figure 1.6 dans le cas de la configuration Kretschmann-Raether). En effet, nous pouvons remarquer une intersection entre la courbe noire représentant la propagation de la lumière dans le verre et la courbe bleue représentant un plasmon à l'interface entre de l'air et du métal. Ainsi un couplage entre l'onde incidente dans le prisme et un plasmon à l'interface air/métal est possible via l'onde évanescente créée lors de la réflexion totale. Nous pouvons aussi voir que le couplage n'est possible que si le diélectrique de l'interface possède un indice optique bien plus faible que celui du prisme.

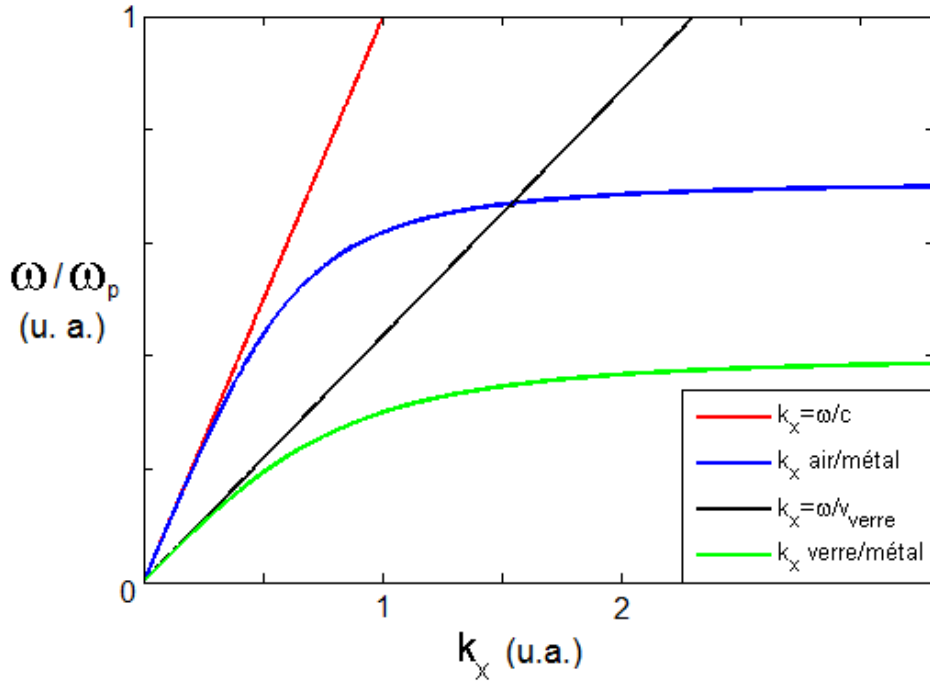


FIGURE 1.6 – Courbes de dispersion de la lumière dans l'air (en rouge), de la lumière dans le verre (en noir), d'un plasmon à une interface air/métal (en bleu) et d'un plasmon à une interface verre/métal (en vert)

Couplage par un réseau

Il est possible d'exciter les plasmons autrement qu'avec la réflexion totale atténuée. Comme dans le cas des anomalies de Wood, les plasmons peuvent être engendrés au moyen d'un réseau périodique de dimension micrométrique voire nanométrique. C'est le réseau lui-même qui permet le couplage, lorsqu'un des ordres de diffraction évanescent générés par le réseau possède un vecteur d'onde k_x proche de celui du plasmon de surface. En plaçant un réseau de diffraction de période d à l'interface entre le diélectrique et le métal (voir figure 1.7), il est en effet possible de diffracter l'onde incidente et de faire apparaître des ordres de diffraction avec des vecteurs d'onde plus élevés dépendant de l'ordre de diffraction n (entier) :

$$k_{x,n} = \frac{\omega}{c} \sin \theta_i + n \frac{2\pi}{d} \quad (1.14)$$

Si ces vecteurs d'onde coïncident avec les vecteurs d'onde des plasmons, ces derniers peuvent être excités :

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_d \epsilon'_m}{\epsilon_d + \epsilon'_m}} = \frac{\omega}{c} \sin \theta_i + n \frac{2\pi}{d} \quad (1.15)$$

Dans ce cas, l'absorption est totale et toute l'énergie d'un ordre de diffraction passe dans un plasmon. Il est aussi possible d'utiliser un réseau pour obtenir le phénomène inverse. On peut faire rayonner un plasmon de surface grâce à un réseau.

Ce couplage avec un réseau est très contraignant lors d'utilisation de codes modaux. En effet, comme nous le verrons dans le chapitre suivant, les codes modaux dont je me sers utilisent les séries de Fourier ce qui induit une périodicité au système. Ainsi, le système peut être considéré comme un réseau et selon la période utilisée, des plasmons de surface apparaissent dans les modélisations. Cela complique énormément les simulations puisqu'il faut alors tenter de casser artificiellement la périodicité afin de ne plus être gêné par ce couplage réseau.

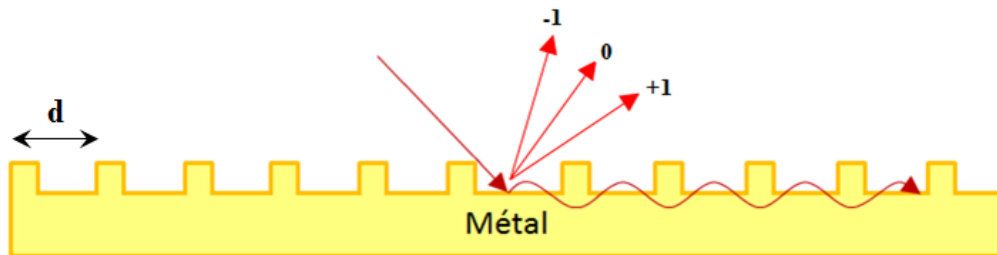


FIGURE 1.7 – Couplage d'une onde lumineuse incidente avec un plasmon via un réseau

Si on trace les courbes de diffraction des différents ordres du réseaux, nous pouvons remarquer que les plasmons peuvent être excités par plusieurs ordres de diffraction différents (voir figure 1.8).

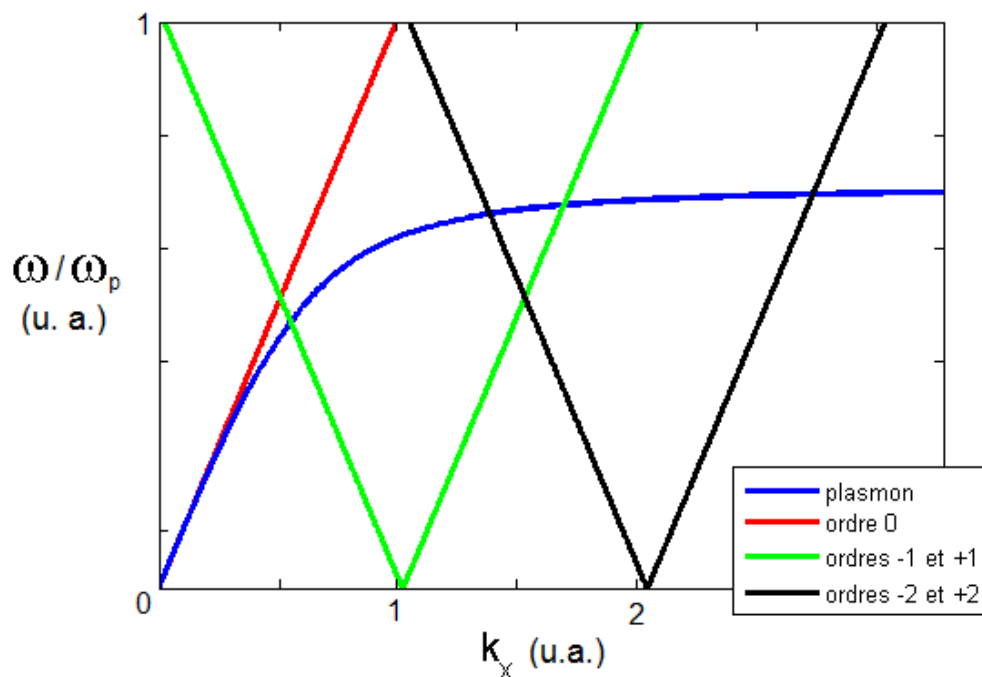


FIGURE 1.8 – Courbes de dispersion d'un plasmon à l'interface air/métal (en bleu), de la diffraction de l'ordre 0 par le réseau (en rouge), de la diffraction des ordres -1 et +1 (en vert) et de la diffraction des ordres -2 et +2 (en gris)

Cette méthode de couplage est très utilisée dans les capteurs biologiques. Elle est assez simple à mettre en œuvre et peu coûteuse. Cependant elle comporte un inconvénient majeur : la lumière incidente passe à travers l'échantillon biologique. Ainsi, les échantillons analysés ne peuvent être que transparents et ne doivent pas diffuser la lumière.

Il est aussi possible de coupler une onde lumineuse à un plasmon par une rugosité sur la surface métallique. Cependant, cette dernière méthode est difficilement contrôlable et seule une petite partie de l'énergie de l'onde incidente se couple au plasmon.

Ce mécanisme de couplage permet aussi de comprendre un phénomène qui a beaucoup intrigué à la fin des années 2000 : la transmission à travers des trous très sub-longueur d'onde percés dans un film métallique. Dans ce cas de figure, un réseau de trous circulaires permet d'exciter un plasmon de surface à l'interface supérieure du film, qui lui-même se couple à l'interface inférieure, et le plasmon de surface de la surface inférieure se couple aux ondes planes grâce au même réseau de trous. De très nombreux articles et controverses ont permis de se faire une idée assez précise de ce mécanisme[21].

Le plasmon de surface a été le premier mode guidé à être utilisé pour une application. En effet, depuis 1968, le contrôle des plasmons a évolué et il est maintenant possible de créer des structures dans lesquelles un plasmon peut être excité à une longueur d'onde choisie. Sachant que la fréquence de résonance du plasmon de surface est très sensible aux milieux proches de l'interfaces, il est possible de détecter des molécules biologiques ou chimiques même avec une faible concentration. C'est ainsi que de nombreux capteurs biochimiques ou à gaz très sensibles ont été créés dans les trente dernières années[22].

1.3 Résonance localisée de plasmons de surface

Nous venons de parler des plasmons de surface qui se propagent le long d'une interface. Ces plasmons se subissent pas de confinement dans le plan. Si on réduit les dimensions du métal afin d'obtenir des nanoparticules, nous pouvons voir que la répartition du nuage électronique résonant est modifiée de manière significative. On parle alors d'un autre type de plasmon : le plasmon de surface localisé. Sous l'effet d'un champ électrique à une fréquence précise, les électrons de surface de la nanoparticule oscillent en phase (voir figure 1.9). La densité électronique de la particule prend alors la symétrie d'un dipôle oscillant. La fréquence caractéristique à laquelle se crée la résonance du plasmon de surface localisé est différente de celle du plasmon de surface d'un même métal plan. Ces plasmons localisés permettent de confiner la lumière à des dimensions inférieures à la longueur d'onde et dans toutes les directions. L'un des grands avantages des plasmons localisés est que leur fréquence de résonance se trouve dans le domaine du visible pour les métaux nobles. Par exemple, pour une nanoparticule d'or d'une taille de moins de 100 nm, la résonance a lieu à 525 nm.

1.3.1 Théories expliquant les plasmons localisés

Les résonances de plasmons localisés sont utilisées depuis des siècles dans des fabrications humaines. L'exemple le plus connu et le plus ancien de cette utilisation est la coupe de Lycurgus (voir figure 1.10) datant du *IV^e* siècle et conservée au British Museum. Cette coupe a été créée à partir d'un mélange que l'on nomme rubis doré. Ce mélange est fait de verre ou de céramique auquel il faut ajouter de petites quantités de métaux nobles (or, argent ou cuivre généralement). Ces métaux forment des nanoparticules de 50 à 70 nm qui changent les propriétés optiques

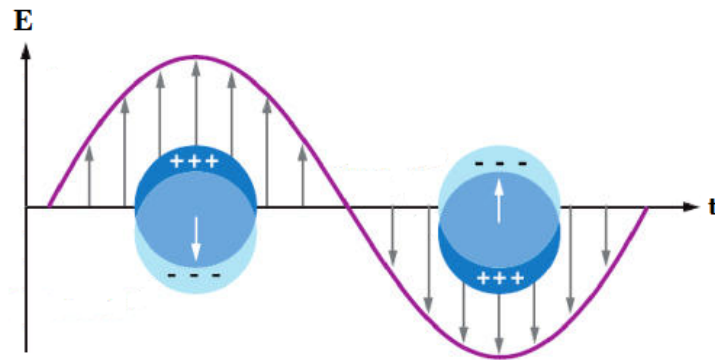


FIGURE 1.9 – Schéma illustrant la polarisabilité d'une particule métallique sous un champ électrique E oscillant (la particule est représentée en bleu foncé et le nuage électronique en bleu clair).

de l'objet du fait de l'excitation par la lumière visible de plasmons localisés à la surface des ces nanoparticules. De ce fait, si la coupe est éclairée de l'extérieur et que l'on voit la lumière réfléchie par la coupe, elle apparaît verte alors que lorsqu'elle est illuminée par l'intérieur que c'est la lumière transmise par la coupe qui nous arrive, elle paraît rouge. Le même procédé a été utilisée par plusieurs civilisations. Par exemple, on a aussi retrouvé des objets d'arts étrusques, des poteries arabes et certaines couleurs de vitraux médiévaux faits au moyen du même type de mélange. Cependant, il a fallu attendre le XX^e siècle pour qu'une théorie physique explique ces phénomènes de résonance.



FIGURE 1.10 – Photographie de la coupe de Lycurgue éclairée de face (en réflexion) à gauche et par l'arrière (en transmission) à droite

En effet, dès 1857 Faraday attribue la différence de couleur entre une plaque d'or et des particules d'or en suspension à la taille réduite des particules[23]. Mais ce n'est qu'à partir de 1908 que des théories se mettent en place pour expliquer la réponse optique de nanoparticules. Le premier à avoir étudié ces nanoparticules fut Gustav Mie[24]. En partant de la théorie électromagnétique de Maxwell, il a développé une théorie pouvant calculer la réponse d'une

sphère métallique à une excitation électromagnétique. Cette théorie permet entre autres d'obtenir les sections efficaces de diffusion σ_{diff} , d'extinction σ_{ext} et d'absorption σ_{abs} d'une sphère métallique non chargée dans un milieu homogène avec un champ électromagnétique externe :

$$\sigma_{diff} = \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad (1.16)$$

$$\sigma_{ext} = \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \cdot \Re(a_n + b_n) \quad (1.17)$$

$$\sigma_{abs} = \sigma_{ext} - \sigma_{diff} \quad (1.18)$$

où a_n et b_n sont des coefficients appelés coefficients de Mie trouvés grâce aux conditions aux limites entre la sphère et le milieu environnant et à partir des fonctions de Bessel. La section efficace d'absorption est très élevée ce qui fait des plasmons de surface localisés un des moyens les plus efficaces énergétiquement pour d'interagir avec la lumière. En divisant ces sections efficaces par l'aire de la sphère, nous obtenons les efficacités de diffusion Q_{diff} et d'absorption Q_{abs} qui représentent la capacité d'une particule à diffuser et à absorber l'énergie d'une onde électromagnétique incidente dans toutes les directions de l'espace.

$$Q_{diff} = \frac{\lambda^2}{2\pi^2 r^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad (1.19)$$

$$Q_{ext} = \frac{\lambda^2}{2\pi^2 r^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \cdot \Re(a_n + b_n) \quad (1.20)$$

$$Q_{abs} = Q_{ext} - Q_{diff} \quad (1.21)$$

La théorie de Mie ne peut s'appliquer qu'au cas où la taille de la sphère est supérieure à la longueur d'onde de l'onde électromagnétique avec laquelle le métal interagit. Pour des sphères de taille inférieure (nanométrique), il faut utiliser une autre théorie mise au point à la fin des années 1940 par Fröhlich[25]. Cette théorie fonctionne pour des sphères plus petites que la longueur d'onde de l'onde incidente et que cette longueur d'onde dans la particule. La sphère est considéré plongée dans un milieu homogène de permittivité ϵ_{ext} . La particule étant très petite, nous considérons qu'elle subit un champ uniforme \vec{E}_0 (approximation quasi-statique) sous l'influence duquel elle se polarise. Le champ externe peut alors s'écrire comme la superposition du champ incident et du champ généré par un dipôle au centre de la nanoparticule. On peut alors calculer son moment dipolaire \vec{p} en fonction de la polarisabilité de la particule α :

$$\vec{p} = \alpha \epsilon_0 \epsilon_{ext} \vec{E}_0 \quad (1.22)$$

$$\text{avec } \alpha = 4\pi r^3 \frac{\epsilon_m - \epsilon_{ext}}{\epsilon_m + 2\epsilon_{ext}} \quad (1.23)$$

Dans le cas particulier où la partie réelle de la permittivité du métal compense deux fois celle du milieu extérieur, une résonance apparaît et un plasmon de surface localisé est excité. Cela explique l'utilisation de métaux nobles comme l'or ou l'argent puisque la partie réelle de leur permittivité est négative.

1.3.2 Facteurs influençant la résonance

Pour pouvoir utiliser ces résonances, il faut connaître et pouvoir contrôler les facteurs influençant le plasmon de surface localisé. En effet, la sensibilité de la résonance dépend de plusieurs facteurs qui seront exposés ici.

Le premier de ces facteurs est la taille de la particule. Si la particule est trop grande (supérieure à $\lambda/10$), le champ extérieur n'est pas homogène pour toutes les régions de la particule. Un déphasage entre l'oscillation des électrons de conduction des diverses régions apparaît alors et entraîne l'émergence de nouveaux modes dont la fréquence de résonance diffère de celle du dipôle parfait. Ces modes sont pris en compte dans la théorie de Mie. Ils absorbent la lumière mais ne peuvent pas la réémettre ce qui crée un mécanisme d'amortissement de la résonance. Cela se traduit par un élargissement et un red shift du pic de la résonance.

La forme a aussi un impact très fort sur le comportement optique de la nanoparticule. Un changement morphologique même minime par rapport à la sphère étudiée dans les diverses théories modifie considérablement la résonance de la particule. Les pics de résonances peuvent voir leur largeur évoluée ou encore changer de fréquence. D'autres pics peuvent aussi apparaître. En réalité, plus la particule possède d'axes de polarisabilité différents, plus son spectre d'extinction sera complexe.

Le dernier paramètre influençant fortement la résonance est le milieu environnant. La polarisabilité des électrons de surface est modifiée selon la permittivité du milieu extérieur. Si la permittivité extérieure augmente, le pic de résonance subit alors un red shift. C'est souvent ce mécanisme qui est utilisé dans les capteurs biochimiques à base de plasmons localisés. Indubitablement, les mêmes particules plongées dans divers liquides physiologiques comportant différentes molécules réagiront différemment et leur pic de résonance se décalera plus ou moins en fonction du milieu extérieur. Cela permet de reconnaître les molécules en présence ou leur concentration par exemple.

Il faut aussi savoir que la présence d'autres particules métalliques altère également la fréquence de résonance en la décalant vers le rouge ou vers le bleu selon la polarisabilité de cette particule. En résumé, en jouant sur la taille, la forme et le matériau de la particule ainsi que sur le milieu dans laquelle elle se trouve, il est possible de modifier la fréquence de résonance de l'ultraviolet au proche voire moyen infrarouge.

Depuis la mise en place des théories de Mie et Fröhlich, la connaissance des nanoparticules et leur contrôle a beaucoup progressé. Nous sommes à présent capable de créer des détecteurs biologiques à base de nanoparticules[26, 27] mais il existe aussi d'autres applications à ces modes. Ils peuvent par exemple induire une séparation de phase[28] ou bien désinfecter de l'eau[29] ou encore ils peuvent devenir de bons marqueurs biologiques[30].

1.4 Modes guidés

Nous avons présenté plus haut les plasmons de surface qui sont les bases de la plasmonique. Depuis leur découverte, un grand nombre de chercheurs se sont mis à les étudier. On leur trouve beaucoup d'applications diverses. Depuis des structures plus complexes basées sur ces plasmons ont été créées et étudiées elles aussi afin de répondre à différentes problématiques : le confinement de la lumière, la possibilité de fonctionnaliser le métal, guider la lumière, etc. Ces structures sont le plus souvent faites de couches. Par exemple, nous pouvons utiliser une couche métallique entourée de deux couches diélectriques ou bien une couche diélectrique enfermée entre deux métaux. Ces structures font apparaître de nouveaux modes dérivés des plasmons de surface.

1.4.1 Long range and short range surface plasmons

Lorsque nous avons présenté les plasmons de surface, nous avons utilisé une interface entre deux milieux semi-infinis. Cependant, dans la réalité, les milieux métalliques ou diélectriques ont une épaisseur finie. Ces couches peuvent se trouver entre deux milieux de matériaux différents ou identiques. Il est alors possible qu'un plasmon de surface soit généré sur chacune des deux interfaces de la couche. Lorsqu'une couche métallique est assez fine (de l'ordre de l'épaisseur de pénétration des plasmons dans le métal), les deux plasmons peuvent se voir et interagir ensemble. Lorsque la structure est symétrique c'est-à-dire que la couche métallique est comprise entre deux couches diélectrique identiques, l'interaction des deux plasmons peut aboutir à la création de deux modes distincts (voir figure 1.11). Si les électrons des deux interfaces oscillent en phase, le champ électrique du mode est symétrique et le mode est nommé LRSP (long-range surface plasmon). Pour l'autre mode, les électrons oscillent en opposition de phase et le champ est donc antisymétrique. Ce mode est un SRSP (short-range surface plasmon).

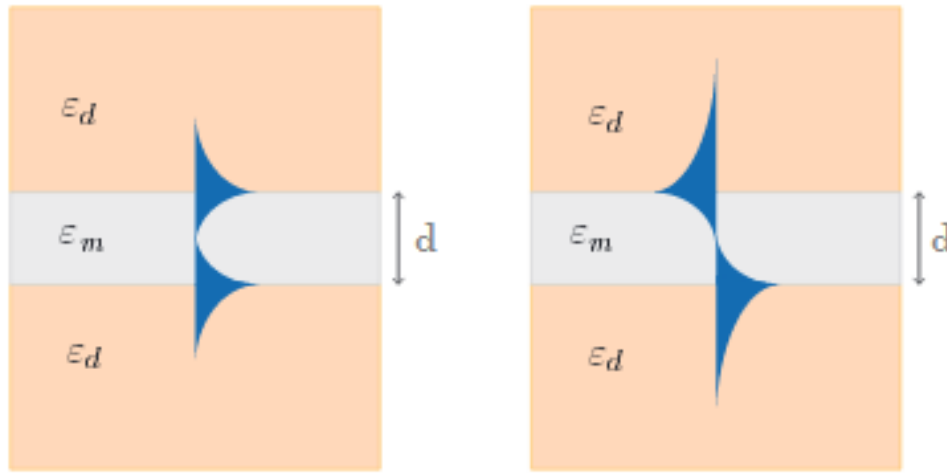


FIGURE 1.11 – Profil du champ représentant un LRSP (symétrique) à gauche et un SRSP (antisymétrique) à droite

Il est possible de trouver les relations de dispersion de ces deux modes en reprenant les équations des plasmons de surface avec le modèle de Drude. En effet, la condition d'existence d'une onde qui se propage dans ce guide métallique admet deux solutions :

$$LRSP : \quad \alpha_d \epsilon_m + \alpha_m \epsilon_d \tanh\left(\frac{\alpha_m d}{2}\right) = 0 \quad (1.24)$$

$$SRSP : \quad \alpha_d \epsilon_m + \alpha_m \epsilon_d \coth\left(\frac{\alpha_m d}{2}\right) = 0 \quad (1.25)$$

où d est l'épaisseur de la couche métallique.

Ces deux modes se comportent de manière très différente. Le premier, le LRSP, peut se propager sur plusieurs centaines de micromètres alors que le second comme son nom l'indique ne se propage que sur une dizaine de microns. Cette différence vient du fait que le champ correspondant au LRSP s'annule dans le métal alors que celui correspondant au SRSP ne s'annule pas. Cela entraîne de grandes pertes par absorption dans le métal et donc une atténuation rapide

du mode SRSP. Ce mode reste donc très confiné. Le LRSP quant à lui s'atténue beaucoup moins et peut donc se propager plus loin. Son confinement est ainsi assez faible. Puisque son champ s'annule dans le métal, les pertes sont moindres. Le mode LRSP est très intéressant car il peut se propager dix fois plus loin qu'un plasmon de surface.

Ces modes sont utilisés fréquemment afin de créer des capteurs biologiques[31] ou pour améliorer la spectroscopie Raman[32]. L'étude numérique de ces modes dès les années 2000 par Berini[33, 34] a aussi ouvert la voie à la recherche de nanocomposants optiques afin de pouvoir miniaturiser des circuits[35]. Pour ce faire, il a souvent fallu avoir recours à des structures de modes guidés un peu plus complexes comme des guides de plasmons formant des canaux[36] ou encore à base de nanofils d'argent[37, 38]. Cependant, une des structures les plus efficaces et ayant le plus d'avenir est basée sur des guides métal-diélectrique-métal[39]. Ces guides conduisent un mode que l'on appelle gap-plasmon et que nous allons voir plus en détails.

1.4.2 Cas du gap-plasmon

Si nous considérons cette fois un guide métallique c'est-à-dire un film diélectrique enfermé entre deux demi-espaces métalliques, nous pouvons retrouver deux modes similaires au cas précédent si le film est assez épais. L'analyse de ce phénomène est identique : on peut considérer qu'on a des plasmons de surface couplés. Cependant, si l'épaisseur du film diélectrique diminue et qu'elle devient inférieure à 50 nm, il n'y a plus que le mode symétrique qui puisse encore se propager. Par contre, même si le film ne mesure que quelques nanomètres, la lumière réussit toujours à se glisser dans l'interstice. Le mode existant dans le cas d'un petit interstice est nommé gap-plasmon et il possède des propriétés étonnantes et très intéressantes dont nous discuterons plus bas. De façon assez surprenante, il est assez aisé de l'exciter avec une onde plane incidente, malgré une taille du "gap" de quelques nanomètres seulement.

Le gap-plasmon, comme le plasmon de surface, possède un vecteur d'onde plus grand que la lumière dans le vide. On peut alors écrire la forme mathématique du champ représentant le gap-plasmon comme étant évanescents dans le métal (de la forme $Ae^{\pm k_m z}$) et dans le film diélectrique (de la forme $B \cosh(k_d z)$). La figure 1.12 représente le profil du gap-plasmon le long de l'axe z . Il est ensuite possible de retrouver la relation de dispersion du gap-plasmon[1] :

$$\frac{\alpha_d}{\epsilon_d} \tanh\left(\frac{\alpha_d d}{2}\right) + \frac{\alpha_m}{\epsilon_m} = 0 \quad (1.26)$$

avec $\alpha_m = \sqrt{k_x^2 - \epsilon_m k_0^2}$ et $\alpha_d = \sqrt{k_x^2 - \epsilon_d k_0^2}$.

L'avantage principal de ce mode est la possibilité de le confiner dans un espace très restreint. En effet, lorsque la lumière se propage dans un gap diélectrique très fin entre deux métaux, les bras évanescents dans le métal ralentissent la progression de l'onde dans le diélectrique. Tout se passe comme si la lumière se propageait dans un milieu d'indice effectif bien plus élevé que celui du diélectrique. La figure 1.13 représentant l'indice effectif k_x/k_0 du milieu en fonction de la taille du gap. Elle a été obtenue grâce au code que j'ai développé et que je présenterai dans le deuxième chapitre. Sur cette figure, on remarque que plus le gap est fin, plus l'indice effectif augmente. Il diverge même théoriquement. Mais en dessous d'un nanomètre, on peut commencer à remettre en doute la description de la frontière entre les milieux comme quelque chose d'abrupt.

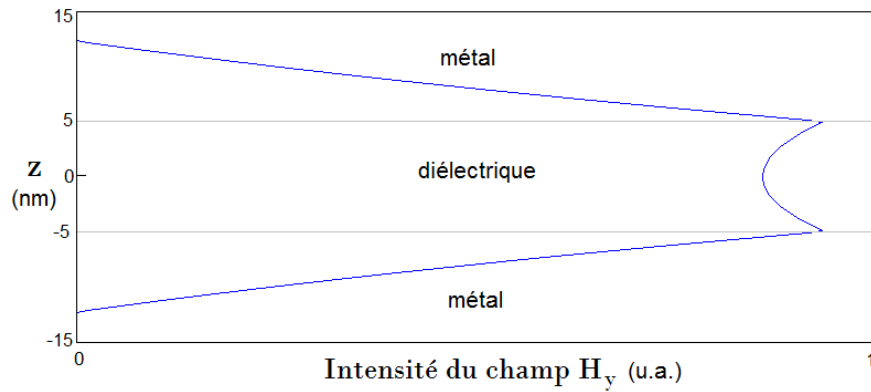


FIGURE 1.12 – Profil du champ représentant le gap-plasmon dans un film diélectrique de 10 nm, suivant l’axe z

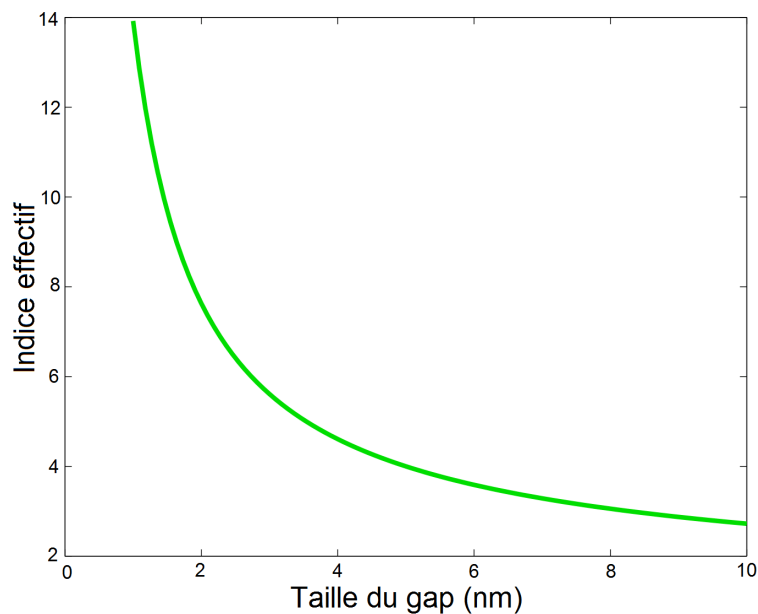


FIGURE 1.13 – Indice effectif du milieu de propagation du gap-plasmon en fonction de l’épaisseur du gap

Cette propriété des gap-plasmons explique surtout que les résonateurs à gap-plasmon, qui sont des cavités pour ce mode particulier, sont particulièrement petits. La taille typique d’une cavité résonante est de l’ordre d’une demi-longueur d’onde du mode. Cette longueur d’onde est ici $\lambda_{eff} = \frac{2\pi}{k_x}$ et elle tend donc vers zéro quand la taille de l’interstice tend vers zéro. Comme la partie imaginaire de la constante de propagation augmente aussi énormément dans ce cas, on peut se demander si le facteur de qualité ne va pas tendre vers zéro. En réalité, bien que la partie imaginaire diverge aussi, comme la taille du résonateur décroît, le coefficient de qualité reste constant[40].

Les résonateurs à gap-plasmons peuvent être de plusieurs types (voir figure 1.14). Les patch déposés sur un plan métallique sont le premier[1]. Le gap-plasmon est excité sous le patch par l’onde plane incidente. Pour le comprendre, il faut avoir à l’esprit qu’une onde plane arrivant perpendiculairement à un plan métallique possède un maximum du champ magnétique au niveau de ce plan. C’est ce champ magnétique qui sert d’excitation pour le mode se propageant dans l’interstice. Quand le gap-plasmon arrive à un bord du patch, comme celui-ci se termine,

il se produit une réflexion importante. Elle est d'autant plus efficace que l'interstice est petit. Le patch constitue donc une cavité pour le gap-plasmon.

On peut aussi envisager d'exciter un gap-plasmon en utilisant un coupleur à prisme, comme dans le cas d'une configuration de Kretschmann-Raether pour le plasmon de surface. Ceci constitue aussi un résonateur à gap-plasmon.

Le dernier type de résonateur à gap-plasmon est une fente extrêmement fine (quelques nanomètres), et très peu profonde (typiquement une quinzaine de nanomètres). Ces fentes sont des résonateurs à gap-plasmon parce que celui-ci se réfléchit à la fois au bord de la fente et au fond, qui se comporte comme un miroir. Dans ce cas, une taille de $\lambda_{eff}/4$ est suffisante pour avoir une résonance.

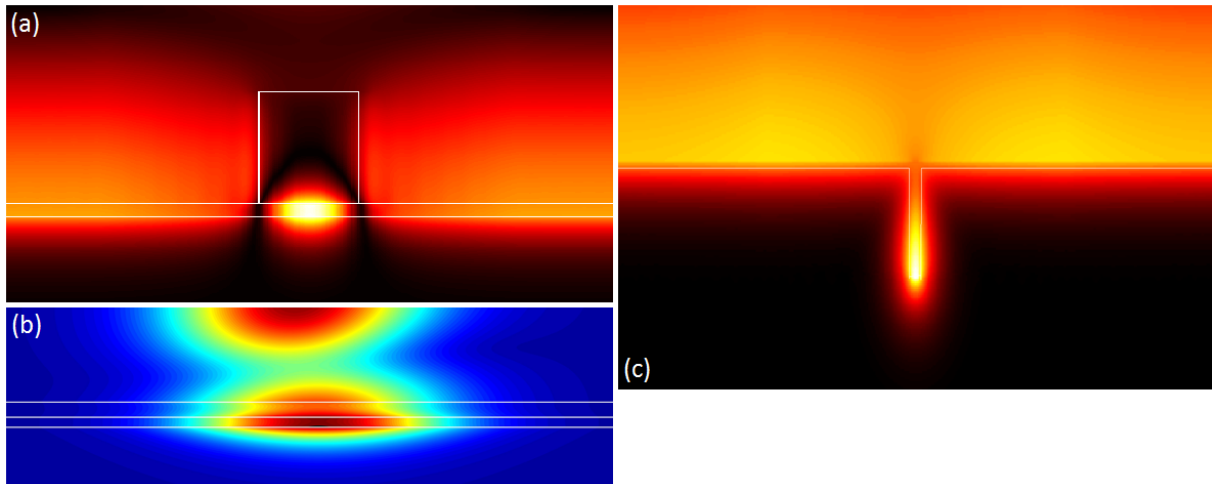


FIGURE 1.14 – Cartes de champ des excitations des différents types de résonateurs à gap-plasmons (a) Un nanopatch de 100 nm déposé sur un substrat métallique (b) Un guide métallique avec un coupleur à prisme (c) Une fente de 10 nm

Cette taille extrêmement réduite comparée à la longueur d'onde dans le vide explique l'efficacité si importante de ces résonateurs. En effet, les résonateurs sub-longueurs d'onde conservent une section efficace d'absorption quasi constante, de l'ordre de $\pi \times (\lambda/2)^2$, quelle que soit leur taille. Ainsi, plus ils sont petits, plus leur efficacité relative (le rapport de la section efficace d'absorption sur la section géométrique du résonateurs) est grande. Elle peut facilement atteindre un facteur 30, voire plus. Fabriquer des résonateurs à cette échelle, pour le visible devient aussi un véritable défi. Récemment, une façon d'auto-assembler ces résonateurs a été proposée[41] en se basant sur l'utilisation de nanocubes synthétisés chimiquement. Cette technique fournit des résonateurs disposés aléatoirement, mais elle est pour le coup extrêmement peu onéreuse. Cela pourrait permettre à l'avenir de généraliser l'utilisation de ces résonateurs et de leur trouver des applications pratiques.

Les résonateurs à gap-plasmons sont en effet très prometteurs aussi bien d'un point de vue théorique pour la génération d'harmonique en utilisant la non-linéarité du métal[42] ou pour mettre en évidence la non-localité[43, 44] que pour les applications. Ils peuvent par exemple devenir de très bons capteurs biologiques[45, 46, 47]. En effet, ils sont extrêmement sensibles à leur milieu environnant et de ce fait, la présence de quelques molécules suffit à modifier la fréquence de résonance de manière détectable. Ils sont capables de concentrer très efficacement

le champ[41] et peuvent ainsi devenir de très bons absorbeurs sélectifs[48]. Ainsi il est possible de faire changer la couleur d'une surface en absorbant une longueur d'onde. Cela pourrait entraîner la création de nouveaux type d'affichage. Ces résonateurs à gap-plasmons permettent aussi de contrôler la lumière réfléchi en concevant des métasurfaces[49]. Ce sont de très bonnes nanoantennes[50] produisant un effet Purcell si fort[2, 51, 52, 53] que cela leur permettra peut-être de jouer un rôle dans le futur des télécommunications.

La plasmonique est aujourd'hui un vaste domaine, porté par des progrès dans les méthodes de fabrication - autant par les techniques de lithographie que par les méthodes de synthèse chimique. Les pertes accompagnant l'excitation de modes plasmoniques limitent forcément la portée des applications. On a pensé un temps utiliser des modes de surface pour transporter l'information dans les microprocesseurs, pour améliorer le rendement de cellules solaires. Ce sont des applications pour lesquelles les pertes sont trop élevées, il est très peu probable que cela fonctionne. Pour l'instant, l'application majeure (commerciale) de la photonique reste la détection de molécules d'intérêt biologique par excitation de résonances à plasmons de surface. Pour limiter l'influence des pertes, la communauté s'intéresse de près aux assemblées bidimensionnelles de résonateurs pour contrôler la lumière de façon extrême[54, 55].

Les résonateurs à gap-plasmon, et particulièrement les antennes patch, semblent une piste intéressante, malgré les pertes, pour de nombreuses applications. Pour fabriquer des absorbeurs sélectifs ou pour faire des capteurs pour détecter des molécules d'intérêt biologique, les pertes sont presque recherchées. D'autres phénomènes que l'absorption, comme l'effet Purcell, sont exaltés par ces structures de façon assez unique. Les résonateurs à gap-plasmon sont aussi capables de diffuser la lumière. On envisage d'utiliser cette propriété pour améliorer les structures émettrices de lumières (LED) en facilitant l'extraction de lumière malgré les pertes. Les résonateurs à gap-plasmon peuvent aussi servir à contrôler la phase de la lumière réfléchi, et à fabriquer des métasurfaces autorisant un excellent contrôle du front d'onde réfléchi[49].

C'est au vu de toutes ces applications potentielles que l'on comprend mieux pourquoi il est important de comprendre en détail le fonctionnement des résonateurs à gap-plasmon. Notamment, un effort théorique récent vise à bien comprendre les résonances, comment elles sont excitées[56, 57]. C'est dans cette lignée que se place mon travail.

CHAPITRE 2

RÉSOLUTION MODALE DES ÉQUATIONS DE MAXWELL

Dans le domaine de la plasmonique, toute étude dérive nécessairement d'une résolution des équations de Maxwell. En se reposant sur ces dernières, les physiciens tentent d'expliquer nombre de phénomènes optiques. Dès lors que la structure est un peu complexe, et sort des traditionnels empilements multi-couches, les calculs nécessaires afin de prévoir le comportement physique d'objets étudiés sont très lourds et peuvent rarement être effectués à la main. Il est cependant possible de mettre au point des programmes qui donnent des solutions aux équations de Maxwell, dans le domaine temporel ou fréquentiel. Avec la démocratisation d'ordinateurs ayant une puissance de calculs de plus en plus élevée, ces programmes sont devenu un sujet de recherche à part entière et ils ont littéralement envahis les laboratoires. Certaines méthodes numériques sont spécifiques aux équations de Maxwell comme la méthode des différences finies dans le domaine temporel ou la méthode modale de Fourier développée dans les années 90. D'autres sont plus généralistes, comme celles qui sont basées sur les éléments finis.

Dans ce chapitre, je commencerai par exposer la façon dont on peut résoudre relativement simplement les équations de Maxwell dans le cas de structures lamellaires, ou multi-couches, ce qui me permettra d'exposer des éléments d'électromagnétisme. J'ai d'ailleurs participé à la mise au point, aux tests d'un programme permettant de simuler ces structures et qui a ensuite été libéré[58]. J'ai aussi activement participé à sa diffusion[59]. Ensuite, je détaillerai les développements mathématiques que j'ai utilisés afin de résoudre numériquement les équations de Maxwell pour des structures beaucoup plus complexes. J'ai ainsi utilisé une variante de la méthode modale de Fourier qui permet notamment d'améliorer la convergence de cette méthode lorsqu'on l'utilise avec des métaux. Pour ce qui est du domaine fréquentiel, la méthode modale de Fourier est sans doute la méthode spécifique aux équations de Maxwell de référence. Elle est particulièrement stable et rapide et elle donne surtout accès à des grandeurs physiques importantes, comme les coefficients de réflexion ou de transmission ce qui était essentiel pour la suite de mon travail. J'ai aussi introduit des "Perfect Matching Layers" pour casser la périodicité intrinsèque à cette méthode.

2.1 Milieux multi-couches

Publiées dès 1865, les équations de Maxwell[60] sont le fondement de l'électromagnétisme. Grâce à ces équations, James Clark Maxwell a prédit la propagation des ondes électromagné-

tiques :

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

$$r \vec{\otimes} \vec{E} = -\partial_t \vec{B} \quad (2.2)$$

$$\operatorname{div} \vec{B} = 0 \quad (2.3)$$

$$r \vec{\otimes} \vec{H} = \vec{j} + \partial_t \vec{D} \quad (2.4)$$

À ces équations, il faut ajouter les relations constitutives qui décrivent la réponse de la matière, notamment sa polarisation, sous l'effet de champs électriques et magnétiques. Dans le cas où les matériaux sont linéaires, isotropes, locaux et quand leurs propriétés ne dépendent pas du temps, ces relations s'écrivent :

$$\vec{D} = \epsilon_0 R_e * \vec{E} \quad (2.5)$$

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

où $R_m(\vec{r}, t)$ et $R_e(\vec{r}, t)$ sont les réponses locales du milieu, et où $*$ dénote un produit de convolution en temps. Dans la suite de mes travaux, je considère des problèmes sans sources. Cela induit que $\vec{j} = \vec{0}$ et $\rho = 0$. Tous les problèmes que l'on résoudra ici sont indépendants du temps dans le sens où leur géométrie ou les propriétés des matériaux restent toujours les mêmes. De ce fait, une transformation de Fourier par rapport au temps des équations peut être faite sur toutes les grandeurs physiques. Cela est exactement équivalent à supposer que tous les champs ont une dépendance harmonique en $\exp(-i\omega t)$. Dans ce cas, les relations constitutives ont la forme extrêmement simple, mais cependant équivalente à la forme précédente :

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} \quad (2.7)$$

$$\vec{B} = \mu \vec{H} \quad (2.8)$$

où $\epsilon = \epsilon_0 \epsilon(\vec{r}, \omega)$ est la permittivité et $\mu = \mu_0 \mu(\vec{r}, \omega)$ la perméabilité du matériau considéré.

2.1.1 Résolution électromagnétique du problème

Dans la suite de cette section, je discuterai le cas de structures lamellaires c'est-à-dire de structures faites de couches empilées. Ces structures présente une permittivité ϵ et une perméabilité μ dépendant uniquement de z et constantes par morceaux (voir figure 2.1). Le problème étant invariant en x et en y , il est possible d'utiliser des transformées de Fourier par rapport à ces deux variables pour toutes les équations. Ainsi la solution des équations précédentes peut se mettre sous la forme d'une combinaison linéaire de champs dont la dépendance en x et y est de la forme $\exp i(\alpha x + \beta y)$. Il est possible de se ramener au cas où $\beta = 0$ par un changement simple de coordonnées.

Cela n'altère en rien la généralité des équations. On peut ainsi supposer que les solutions n'ont pas de dépendance en y et on peut de ce fait décomposer les équations (2.2) et (2.4) en deux systèmes étant parfaitement indépendants :

$$\begin{cases} -\partial_z E_y = i\omega \mu_0 \mu H_x \\ \partial_z E_x - \partial_x E_z = i\omega \mu_0 \mu H_y \\ \partial_x E_y = i\omega \mu_0 \mu H_z \end{cases} \quad (2.9)$$

$$\begin{cases} -\partial_z H_y = -i\omega \epsilon_0 \epsilon E_x \\ \partial_z H_x - \partial_x H_z = -i\omega \epsilon_0 \epsilon E_y \\ \partial_x H_y = -i\omega \epsilon_0 \epsilon E_z \end{cases} \quad (2.10)$$

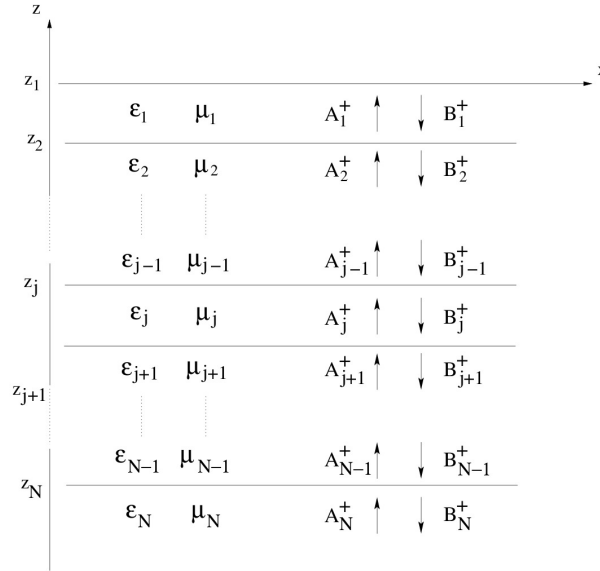


FIGURE 2.1 – Schéma d'une structure multicouches

On distingue donc deux cas, correspondant à deux polarisations particulières du rayonnement incident : la polarisation TE, ou $E_{//}$, correspondant à un champ \vec{E} perpendiculaire au plan d'incidence, et donc parallèle aux interfaces entre les différentes couches, et la polarisation TM, ou $H_{//}$, correspondant à un champ \vec{H} perpendiculaire au plan d'incidence et donc parallèle aux interfaces. Les quantités centrales pour chacune de ces polarisations sont donc respectivement E_y et H_y :

$$\begin{cases} -\partial_z E_y = i\omega \mu_0 \mu H_x \\ \partial_z H_x - \partial_x H_z = -i\omega \epsilon_0 \epsilon E_y \\ \partial_x E_y = i\omega \mu_0 \mu H_z \end{cases} \quad (2.11)$$

$$\begin{cases} -\partial_z H_y = -i\omega \epsilon_0 \epsilon E_x \\ \partial_z E_x - \partial_x E_z = i\omega \mu_0 \mu H_y \\ \partial_x H_y = -i\omega \epsilon_0 \epsilon E_z \end{cases} \quad (2.12)$$

Les champs pouvant s'écrire sous la forme $U(z)e^{i\alpha x}$, pour z donné, il est possible de combiner les équations ci-dessus afin de trouver l'équation d'onde :

$$U'' + \left(\frac{\mu\epsilon\omega^2}{c^2} - \alpha^2 \right) U = 0. \quad (2.13)$$

Cela n'est autre qu'une équation différentielle d'ordre 2 dont les solutions sont de la forme :

$$(A_j^+ e^{i\gamma_j(z-z_j)} + B_j^+ e^{-i\gamma_j(z-z_j)}) e^{i(\alpha x - \omega t)} \quad (2.14)$$

où z_j est la coordonnée de l'interface entre les milieux $j-1$ et j , $\gamma_j = \sqrt{\mu_j \epsilon_j k^2 - \alpha^2}$, $k = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}$ et où la racine carrée est le prolongement analytique de la racine carrée au plan complexe. Ceci permet de conserver la validité de tous les calculs qui sont faits ici même si la quantité $\mu_j \epsilon_j k^2 - \alpha^2$ est négative ce qui signifierait que le champ est évanescent dans la couche considérée.

À la traversée d'une interface entre le milieu j et le milieu $j + 1$, les équations de Maxwell imposent la conservation de E_y et $\frac{1}{\mu}\partial_z E_y$ en polarisation TE ($E_{//}$) et de H_y et $\frac{1}{\epsilon}\partial_z H_y$ en polarisation TM ($H_{//}$). À chaque interface, ces conservations nous permettent d'obtenir un système de deux équations qui, pour la polarisation TM, s'écrivent :

$$\begin{cases} A_j^- + B_j^- = A_{j+1}^+ + B_{j+1}^+ \\ \frac{\alpha_j}{\epsilon_j} (A_j^- - B_j^-) = \frac{\alpha_{j+1}}{\epsilon_{j+1}} (A_{j+1}^+ - B_{j+1}^+) \end{cases} \quad (2.15)$$

avec

$$\begin{cases} A_j^- = A_j^+ e^{i\alpha_j(z_{j+1}-z_j)} \\ B_j^- = B_j^+ e^{-i\alpha_j(z_{j+1}-z_j)}. \end{cases} \quad (2.16)$$

Dans le cas de la polarisation TE, le système aurait la même forme, il suffirait de remplacer ϵ_j par μ_j . Si on considérait N couches soit N milieux numérotés de 1 à $N + 1$, on obtiendrait un système de $2(N + 1)$ équations (2 par interfaces) avec $2(N + 2)$ inconnues (les A_j^+ et B_j^+). On parvient ainsi à un système d'équations à résoudre. Le paragraphe suivant détaille une façon particulièrement efficace de le faire.

2.1.2 Méthode des matrices de scattering

Chercher à résoudre avec des méthodes standards le système d'équations précédent se révèle instable dès lors qu'on dépasse un certain nombre de couches, ou des épaisseurs suffisamment grandes. La source de cette instabilité numérique fondamentale réside dans le fait que des exponentielles comme $e^{i\alpha_j(z_{j+1}-z_j)}$ et $e^{-i\alpha_j(z_{j+1}-z_j)}$ soient présentes dans le système en même temps. Ces quantités sont inverses l'une de l'autre, ce qui signifie que l'une peut être très grande, et l'autre très petite. Quand on est amené à additionner deux nombres flottants en machine, cette addition est exacte seulement si ces nombres diffèrent de moins d'un facteur deux. Au delà, cette opération se fait avec des erreurs. Quand on prend un nombre très petit et un nombre très grand pour les additionner ou les soustraire, les erreurs sont très importantes et elles sont responsables des instabilités numériques : l'ordinateur est incapable de fournir un résultat fiable. Il faut donc, pour résoudre un système en apparence aussi simple, prendre des précautions, et tirer parti de la forme spécifique des équations puisque les méthodes généralistes ne fonctionnent pas.

La méthode la plus répandue est celle d'Abélès, introduite dans les années 50, et particulièrement adaptée aux filtres optiques[61], comme les miroirs de Bragg. Cependant, cette redevient instable si on considère par exemple le cas d'une réflexion totale frustrée[62]. C'est aussi le cas des matrices de transfert, ou matrices T , qu'on présente généralement aux étudiants comme étant l'exemple le plus simple de calcul matriciel permettant de trouver la réponse optique d'un multi-couches.

Une façon de résoudre le système sans introduire d'instabilité numérique est de mettre en place des matrices de diffusion à chaque interface, et pour chaque couche à partir des systèmes d'équations 2.16 et 2.15. Ce sont des matrices carrées qui lient les coefficients A et B correspondants aux ondes qui se dirigent vers la structure en question (couche ou interface) aux coefficients C et D correspondants aux ondes qui en sortent (voir figure 2.2). En réécrivant le système 2.16 sous la forme matricielle ci-dessous, nous obtenons la matrice pour une couche j .

$$\begin{bmatrix} A_i^+ \\ B_i^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & e^{i\alpha_j h_j} \\ e^{i\alpha_j h_j} & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} B_i^+ \\ A_i^- \end{bmatrix} \quad (2.17)$$

Cette matrice, comme on peut le voir, présente l'intérêt de ne faire apparaître qu'un seul type d'exponentielle. Ainsi les termes de la matrice sont toujours du même ordre de grandeur. De façon similaire, en reprenant le système 2.15 et en le mettant sous forme matricielle, nous obtenons la matrice interface entre les milieux j et $j + 1$:

$$\begin{bmatrix} A_i^- \\ B_{i+1}^+ \end{bmatrix} = \frac{1}{\frac{\alpha_i}{\epsilon_i} + \frac{\alpha_{i+1}}{\epsilon_{i+1}}} \begin{bmatrix} \frac{\alpha_i}{\epsilon_i} - \frac{\alpha_{i+1}}{\epsilon_{i+1}} & 2\frac{\alpha_{i+1}}{\epsilon_{i+1}} \\ 2\frac{\alpha_i}{\epsilon_i} & \frac{\alpha_{i+1}}{\epsilon_{i+1}} - \frac{\alpha_i}{\epsilon_i} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} B_i^- \\ A_{i+1}^+ \end{bmatrix} \quad (2.18)$$

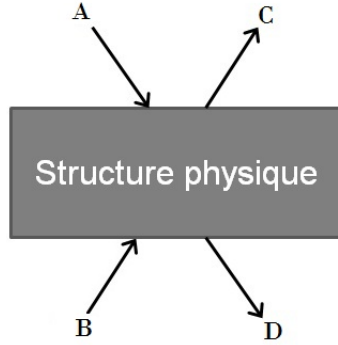


FIGURE 2.2 – Structure avec les coefficients des ondes entrantes et sortantes de la structure

Les matrices présentées ici reliant les ondes entrantes aux ondes sortantes pour une structure donnée sont nommées matrices de scattering (matrices S) ou matrice de diffusion suivant les auteurs. Il est possible de combiner deux matrices de scattering représentant deux structures successives pour obtenir une matrice S correspondant à l'empilement des deux structures. Ce mécanisme est appelé cascading. Il est moins simple que les multiplications intervenant pour les matrices d'Abélès ou les matrices T, mais il garantit la stabilité de la méthode. En partant des deux matrices

$$\begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C \\ D \end{bmatrix} \quad (2.19)$$

et

$$\begin{bmatrix} D \\ E \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} U_{11} & U_{12} \\ U_{21} & U_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} B \\ F \end{bmatrix}, \quad (2.20)$$

la matrice résultante sera

$$\begin{bmatrix} A \\ E \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} S_{11} + \frac{S_{12}U_{11}S_{21}}{1-U_{11}S_{22}} & \frac{S_{12}U_{12}}{1-U_{11}S_{22}} \\ \frac{U_{21}S_{21}}{1-S_{22}U_{11}} & U_{22} + \frac{U_{21}S_{22}U_{12}}{1-S_{22}U_{11}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C \\ F \end{bmatrix}. \quad (2.21)$$

En cascading successivement les matrices de toutes les interfaces et couches, on parvient à la matrice de scattering de la structure complète. Il est ensuite simple de retrouver le coefficient de réflexion de la structure qui est directement le coefficient de la matrice en première ligne et première colonne. Le coefficient de transmission sera lui en première colonne mais deuxième ligne dans la matrice (voir la matrice S en 2.22).

$$\begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r & t' \\ t & r' \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C \\ D \end{bmatrix} \quad (2.22)$$

C'est un des avantages de cette formulation : les quantités physiques que sont les coefficients de réflexion et de transmission sont directement accessibles dans la matrice finale. On peut aussi trouver les coefficients intermédiaires dans les matrices S qui apparaissent au fur et à mesure du calcul.

Les calculs présentés jusqu'à présent et dans la suite ne prennent en compte qu'un seul mode dans chaque milieu, c'est à dire une onde descendante et une onde montantes, qui sont exactement identiques à part leur direction de propagation. En effet, dans la couche j , le champ est représenté par deux ondes propagatives de sens opposé et d'amplitude A_j^+ et B_j^+ . On obtient alors des matrices de diffusion 2×2 . Cependant, il est possible de considérer un plus grand nombre de modes. En généralisant le problème à n modes, les matrices 2×2 deviennent des matrices $2n \times 2n$ mais la façon de procéder reste pratiquement inchangée - seul le cascading change, comme nous le verrons dans la section suivante. Les coefficients de réflexion et de transmission sont forcément plus complexes à obtenir puisqu'il faut savoir où les trouver dans la matrice $2n \times 2n$. Pour le mode j , qui serait un mode d'intérêt, le coefficient de réflexion serait le terme S_{jj} de la matrice de scattering. C'est parce qu'il est si simple d'augmenter le nombre de modes considérés dans un formalisme de type matrice S, que ce formalisme est particulièrement adapté par exemple à la prise en compte de la non-localité dans les métaux via un modèle hydrodynamique[63] où deux modes sont présents dans chaque couche métallique, contre un seul dans une couche diélectrique.

2.1.3 Propagation d'un faisceau dans une multi-couche

Si les coefficients de réflexion et de transmission sont bien évidemment des grandeurs essentielles, il est très souvent important d'accéder à une carte du champ (qu'il soit électrique ou magnétique) dans le cas où on a un faisceau de largeur finie à la place d'une onde plane. Cela aide pour la compréhension physique de la structure. Il se trouve qu'un faisceau monochromatique peut être représenté par une combinaison linéaire d'ondes planes. Si on considère un faisceau gaussien incident centré en x_0 , il peut être écrit ainsi : Un faisceau monochromatique peut être représenté par une combinaison linéaire d'ondes planes.

$$\frac{1}{2\pi} \int A(\alpha) e^{-i\gamma_j z} e^{i(\alpha x - \omega t)} d\alpha, \quad (2.23)$$

avec

$$A(\alpha) = \frac{w}{2\sqrt{\pi}} e^{-\frac{w^2}{4}(\alpha - \alpha_0)^2} e^{-i\alpha x_0} \quad (2.24)$$

où $\alpha_0 = nk \sin(\theta_0)$, et où θ_0 est l'angle d'incidence du faisceau et w sa largeur caractéristique. Il n'est pas possible de réaliser cette intégration rigoureusement de manière numérique. Si on veut discrétiser le problème pour pouvoir calculer l'intégrale, il faut, en pratique, calculer le champ dans chaque des couche pour chacune des ondes planes de la décomposition du faisceau et multiplier chaque résultat par l'amplitude de l'onde plane. Les résultats obtenus sont ensuite sommés pour obtenir le champ total. Les ondes planes sont caractérisées par des constantes de propagation α réparties régulièrement. Cette discrétisation en α entraîne une périodisation sur l'ensemble des champs.

Ces méthodes ont été employées dans notre équipe afin de mettre au point un programme léger et simple d'utilisation mais assez puissant[58] que nous avons nommé Moosh. Conçu comme un couteau suisse, il est en effet capable de modéliser entre autres des miroirs de Bragg (figure 2.3a), des guides d'ondes ou encore l'excitation d'un plasmon de surface au moyen d'un prisme (figure 2.3b) vue dans le chapitre 1. Ce programme peut en effet simuler toutes structures lamellaires qu'elles soient composées de matériaux naturels ou artificiels comme les matériaux main gauche. Ainsi, Moosh peut reproduire la lentille de Pendry voire même des boucles de lumière en empilant des matériaux main droite et main gauche alternativement (figure 2.3c). Les illustrations d'utilisation du programme montrées ici sont des cartes de champ mais il calcule aussi des spectres de réflexion ou de transmission. Ce petit programme peut même inclure des

sources à l'intérieur des couches. En bref, il est capable de produire un éventail complet des grandeurs physiques caractérisant une structure multi-couches quelconque. De plus il est d'une simplicité d'utilisation déconcertante. Pour illustrer ces dires, nous avons présenté ce programme lors d'ateliers durant une école d'été pour professeurs de lycée ou collège. En sortant après une heure de manipulation, tous étaient capables de prendre en main le programme et l'utiliser afin de modéliser des exemples simples comme la réflexion totale ou le miroir de Bragg. Aussi, sachant que ce programmes peut permettre d'illustrer facilement une partie du programme scolaire de physique, nous avons décidé de le présenter dans un article du BUP (Bulletin de l'Union des Physiciens)[59].

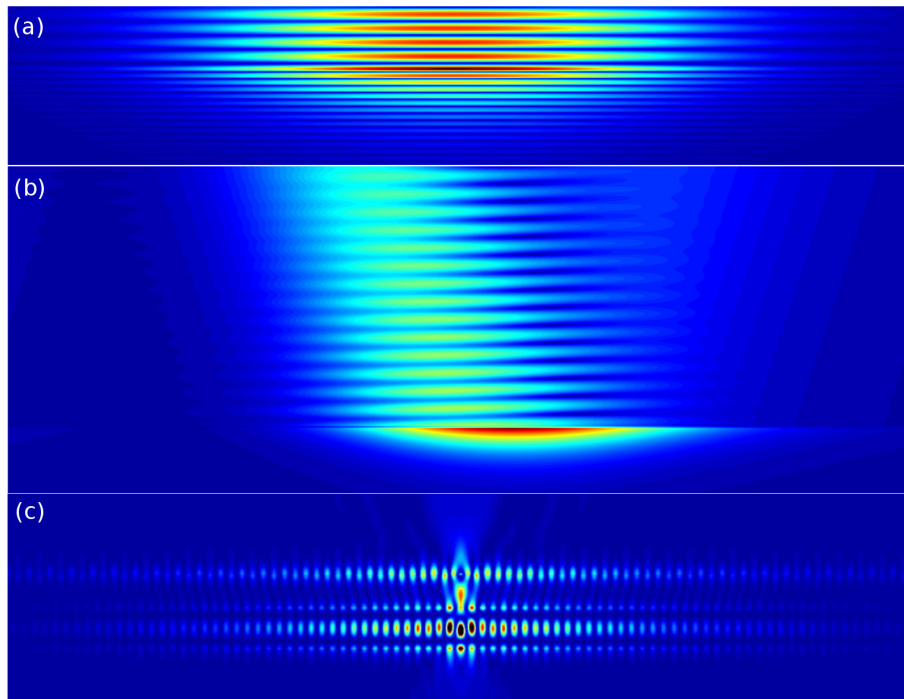


FIGURE 2.3 – Exemples d'utilisation de MOOSH. (a) Réflexion par un miroir de Bragg dans lequel la lumière pénètre avant d'être presque totalement réfléchi (b) Excitation d'un plasmon de surface au moyen d'un prisme en verre (c) Excitation d'une boucle de lumière par une source placée dans le guide diélectrique

2.2 Méthodes modales de Fourier pour les structures périodiques

À présent, la structure pour laquelle nous devons résoudre les équations de Maxwell est une structure constituée de plusieurs couches ayant une permittivité $\epsilon(x)$ qui dépend de x et qui est périodique (voir figure 2.4). Ces structures représentent des empilements de réseaux. Toutes les couches auront la même périodicité d . Ainsi, on supposera donc que $\epsilon(x + d) = \epsilon(x)$ et également que $\mu = 1$ parce que dans la pratique, la grande majorité des matériaux n'ont pas de réponse magnétique.

Les techniques de résolution numériques par la méthode modale de Fourier utilisées dans la suite de cette section ont été développées originellement par Moharam et Gaylord[64] dans les années 80. Cependant, elles comportaient un inconvénient majeur : une mauvaise convergence.

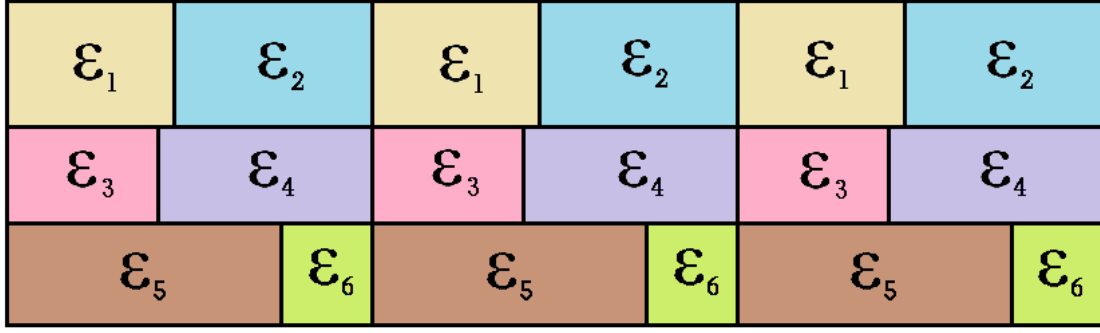


FIGURE 2.4 – Schéma d'une structure type couches réseaux. Ce type de structure peut modéliser toute structure composée essentiellement d'objets parallélépipédiques. On peut par exemple simuler un nanopatch d'argent sur une couche d'or en plaçant quatre couches : la première formée entièrement d'air, la deuxième avec trois parties (air, argent, air), la troisième composée uniquement d'un diélectrique et la dernière faite d'or.

Elles ont lentement été améliorées jusqu'en 1996, année où des apports capitaux ont été faits[65, 66, 67, 68]. Ils ont rendu la méthode encore plus populaire. Ces méthodes modales sont très usitées car elles impliquent des techniques mathématiques et numériques très simples comparées à des méthodes de type éléments finis par exemple. En effet, la résolution des équations de Maxwell revient à trouver la solution d'un problème algébrique aux valeurs propres dans l'espace de Fourier pour chaque couche, puis à connecter les différentes couches entre elles, d'une manière très similaire à ce qu'on peut faire pour les multicouches. Cela leur confère une grande rapidité, qui ne dépend pas de l'épaisseur des couches, mais seulement de leur nombre, notamment.

Encore une fois, le problème est invariant en y et ainsi les solutions de dépendent pas de cette variable. Le système d'équations à résoudre en polarisation TM reste :

$$\begin{cases} -\partial_z H_y = -i\omega \epsilon_0 \epsilon E_x \\ \partial_z E_x - \partial_x E_z = i\omega \mu_0 \mu H_y \\ \partial_x H_y = -i\omega \epsilon_0 \epsilon E_z \end{cases} \quad (2.25)$$

et en polarisation TE :

$$\begin{cases} -\partial_z E_y = i\omega \mu_0 \mu H_x \\ \partial_z H_x - \partial_x H_z = -i\omega \epsilon_0 \epsilon E_y \\ \partial_x E_y = i\omega \mu_0 \mu H_z \end{cases} \quad (2.26)$$

Ces systèmes devront être résolus pour chacune des couches. En combinant ces systèmes chacun de leur côté, nous obtenons à nouveau les équations d'onde suivantes respectivement en polarisation TM et TE :

$$\partial_z(\partial_z H_y) = -\epsilon \partial_x \left(\frac{1}{\epsilon} \partial_x H_y \right) - k^2 \epsilon H_y \quad (2.27)$$

$$\partial_z(\partial_z E_y) = -\partial_x^2 E_y - k^2 \epsilon E_y \quad (2.28)$$

Dans un premier temps, je présenterai la résolution du problème pour une structure éclairée par une onde plane d'incidence nulle en polarisation TE puis en polarisation TM.

2.2.1 Résolution du problème en polarisation TE

Du fait de la périodicité de la permittivité ϵ , cette dernière peut être décomposée en série de Fourier telle que :

$$\epsilon(x) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \epsilon_n e^{i\frac{2\pi n}{d}x} \quad (2.29)$$

Puisque le problème est périodique selon x , le théorème de Bloch[69] impose une forme simple au champ :

$$E_y = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n(z) e^{i\alpha_n x} e^{i\omega t} \quad (2.30)$$

avec $\alpha_n = \alpha_0 + n\frac{2\pi}{d}$. La quantité α_0 contrôle donc la pseudo-périodicité des champs. Cette pseudo-périodicité doit être donnée, elle est en fait liée à l'angle d'incidence de l'onde plane qu'on considère comme éclairant la structure. Si on appelle θ l'angle d'incidence, alors $\alpha_0 = n k_0 \sin \theta$. Ainsi, en laissant de côté la dépendance en $e^{i\omega t}$, le champ prend la forme :

$$E_y = e^{i\alpha_0 x} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n(z) e^{i\frac{2\pi n}{d}x} \quad (2.31)$$

Il est ensuite possible de projeter l'équation 2.28 sur cette nouvelle base pour obtenir une équation en z pour chacune des composantes de Fourier de la décomposition du champ :

$$\partial_z^2 E_n(z) = \alpha_n^2 E_n(z) - k^2 \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \epsilon_{n-m} E_m(z) \quad (2.32)$$

Nous obtenons ainsi un système avec une infinité d'équations (une par composante n). Bien entendu, il est numériquement impossible de calculer les solutions pour toutes ces composantes. Nous ne gardons donc les composantes comprises entre les ordres $-N$ et N . Elles correspondent aux plus basses fréquences spatiales. Nous allons voir maintenant qu'on peut utiliser à nouveau le formalisme des matrices \mathbf{S} à condition d'introduire une notation matricielle pour le champ E :

$$\mathbf{E} = \begin{bmatrix} E_{-N} \\ \vdots \\ E_0 \\ \vdots \\ E_N \end{bmatrix} \quad (2.33)$$

Alors

$$\partial_z^2 \mathbf{E} = \mathbf{M} \mathbf{E} \quad (2.34)$$

où la matrice \mathbf{M} s'écrit en réalité

$$\mathbf{M}_{ij} = \alpha_i \delta_{ij} - k^2 \epsilon_{i-j} \quad (2.35)$$

La matrice composée des éléments ϵ_{i-j} est ce qu'on appelle la matrice Toeplitz correspondant aux coefficients de Fourier ϵ_i . La multiplication de deux quantités périodiques peut ainsi être vue, du point de vue des composantes de Fourier, comme l'application d'une matrice Toeplitz à un vecteur. Comme la matrice \mathbf{M} est naturellement hermitienne, il est possible de définir une matrice \mathbf{U} telle que $\mathbf{M} = \mathbf{U}^{-1} \mathbf{D} \mathbf{U}$ avec \mathbf{D} matrice diagonale et en notant $\mathbf{X}(z) = \mathbf{U} \mathbf{E}(z)$. On peut donc écrire :

$$\partial_z^2 \mathbf{X}(z) = \mathbf{D} \mathbf{X}(z) \quad (2.36)$$

Cela signifie que pour toute couche i , on a :

$$\mathbf{X}_m = A_m^+ e^{i\gamma_m(z-z_i)} + B_m^+ e^{-i\gamma_m(z-z_i)} \quad (2.37)$$

où z_i est la position de l'interface avec la couche du dessus et $\gamma_m = \sqrt{\mathbf{D}_{mm}}$. Étant donné que $\mathbf{E} = \mathbf{U}\mathbf{X}$, alors nous pouvons écrire le champ E comme suit :

$$E_y = \sum_{n=-N}^N E_n(z) e^{i\alpha_n x} \quad (2.38)$$

$$= \sum_{n=-N}^N e^{i\alpha_n x} \sum_{m=-N}^N \mathbf{U}_{nm} (A_m^+ e^{i\gamma_m(z-z_i)} + B_m^+ e^{-i\gamma_m(z-z_i)}) \quad (2.39)$$

À présent, considérons l'interface entre les couches réseau i et $i+1$. Les conditions de continuité à cette interface entraînent la continuité des champs E_y et $H_x = \frac{1}{i\omega\mu_0} \partial_z E_y$. Cette continuité se traduit par celle des coefficients de Fourier d'un côté et de l'autre de cette interface. Ainsi, pour tout $n \in [-N, N]$,

$$\begin{cases} \sum_m \mathbf{U}_{nm}^i (A_m^{i-} + B_m^{i-}) = \sum_m \mathbf{U}_{nm}^{i+1} (A_m^{i+1+} + B_m^{i+1+}) \\ \sum_m \mathbf{U}_{nm}^i \gamma_m^i (A_m^{i-} - B_m^{i-}) = \sum_m \mathbf{U}_{nm}^{i+1} \gamma_m^{i+1} (A_m^{i+1+} - B_m^{i+1+}) \end{cases} \quad (2.40)$$

avec

$$\begin{cases} A_m^{i-} = A_m^{i+} e^{i\gamma_m^i(z_{i+1}-z_i)} \\ B_m^{i-} = B_m^{i+} e^{-i\gamma_m^i(z_{i+1}-z_i)} \end{cases} \quad (2.41)$$

De la même manière que nous avons défini un vecteur des amplitudes de Fourier pour le champ E , nous introduisons :

$$\mathbf{A}^{i+} = \begin{bmatrix} A_{-N}^{i+} \\ \vdots \\ A_0^{i+} \\ \vdots \\ A_N^{i+} \end{bmatrix} \quad (2.42)$$

$$\mathbf{A}^{i-} = \begin{bmatrix} A_{-N}^{i-} \\ \vdots \\ A_0^{i-} \\ \vdots \\ A_N^{i-} \end{bmatrix} \quad (2.43)$$

$$\mathbf{B}^{i+} = \begin{bmatrix} B_{-N}^{i+} \\ \vdots \\ B_0^{i+} \\ \vdots \\ B_N^{i+} \end{bmatrix} \quad (2.44)$$

$$\mathbf{B}^{i-} = \begin{bmatrix} B_{-N}^{i-} \\ \vdots \\ B_0^{i-} \\ \vdots \\ B_N^{i-} \end{bmatrix} \quad (2.45)$$

Il devient alors possible de mettre le système 2.40 sous forme matricielle :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{U}^i & \mathbf{U}^i \\ -\mathbf{U}^i \mathbf{\Gamma}^i & \mathbf{U}^i \mathbf{\Gamma}^i \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{A}^{i-} \\ \mathbf{B}^{i-} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{U}^{i+1} & \mathbf{U}^{i+1} \\ -\mathbf{U}^{i+1} \mathbf{\Gamma}^{i+1} & \mathbf{U}^{i+1} \mathbf{\Gamma}^{i+1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{A}^{i+1+} \\ \mathbf{B}^{i+1+} \end{bmatrix} \quad (2.46)$$

où la matrice $\mathbf{\Gamma}^i$ est diagonale et telle que $\mathbf{\Gamma}_m^i m = \gamma_m^i$.

Nous pouvons réécrire cette relation de manière à reprendre la formalisme des matrices de diffusion c'est-à-dire en liant les modes arrivant sur l'interface à ceux sortant de l'interface :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{A}^{i-} \\ \mathbf{B}^{i+1+} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{U}^i & -\mathbf{U}^{i+1} \\ \mathbf{U}^i \mathbf{\Gamma}^i & \mathbf{U}^{i+1} \mathbf{\Gamma}^{i+1} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} -\mathbf{U}^i & \mathbf{U}^{i+1} \\ \mathbf{U}^i \mathbf{\Gamma}^i & \mathbf{U}^{i+1} \mathbf{\Gamma}^{i+1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{B}^{i-} \\ \mathbf{A}^{i+1+} \end{bmatrix} \quad (2.47)$$

Nous parvenons donc à exprimer une matrice \mathbf{S} à l'interface entre deux couches réseaux comportant chacune n modes. En utilisant le système 2.41, nous pouvons aussi écrire une matrice de scattering à l'intérieur de la couche i :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{B}^{i+} \\ \mathbf{A}^{i-} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & e^{i\mathbf{\Gamma}^i h_i} \\ e^{i\mathbf{\Gamma}^i h_i} & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{A}^{i+} \\ \mathbf{B}^{i-} \end{bmatrix} \quad (2.48)$$

Comme dans le cas des couches homogènes, il est possible de cascader les matrices \mathbf{S} . Le processus qui permet de cascader les matrices de diffusion correspondant à ces structures successives ressemble beaucoup à celui utilisé dans le cas des couches homogènes. La seule différence est qu'ici on devra manipuler des matrices qui ne commutent pas entre elles. Si nous devons cascader deux matrices liant chacune deux vecteurs à deux autres comme suit

$$\begin{bmatrix} \mathbf{A} \\ \mathbf{B} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{S}_{11} & \mathbf{S}_{12} \\ \mathbf{S}_{21} & \mathbf{S}_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{C} \\ \mathbf{D} \end{bmatrix} \quad (2.49)$$

et

$$\begin{bmatrix} \mathbf{D} \\ \mathbf{E} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{U}_{11} & \mathbf{U}_{12} \\ \mathbf{U}_{21} & \mathbf{U}_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{B} \\ \mathbf{F} \end{bmatrix} \quad (2.50)$$

alors la matrice résultante du cascading sera :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{A} \\ \mathbf{E} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{S}_{11} + \mathbf{S}_{12}(\mathbf{1} - \mathbf{U}_{11}\mathbf{S}_{22})^{-1}\mathbf{U}_{11}\mathbf{S}_{21} & \mathbf{S}_{12}(\mathbf{1} - \mathbf{U}_{11}\mathbf{S}_{22})^{-1}\mathbf{U}_{12} \\ \mathbf{U}_{21}(\mathbf{1} - \mathbf{S}_{22}\mathbf{U}_{11})^{-1}\mathbf{S}_{21} & \mathbf{U}_{22} + \mathbf{U}_{21}(\mathbf{1} - \mathbf{S}_{22}\mathbf{U}_{11})^{-1}\mathbf{S}_{22}\mathbf{U}_{12} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{C} \\ \mathbf{F} \end{bmatrix} \quad (2.51)$$

De cette manière il est possible de calculer la matrice \mathbf{S} totale d'une structure que l'on désire étudier.

2.2.2 Résolution en polarisation TM

Dans le cas de la polarisation TM, l'équation d'onde à résoudre est :

$$\partial_z(\partial_z H_y) = -\epsilon \partial_x \left(\frac{1}{\epsilon} \partial_x H_y \right) - k^2 \epsilon H_y \quad (2.52)$$

Dans ce cas, la démarche à suivre est *a priori* la même que pour la polarisation TE. Il nous faut juste considérer, grâce à la règle de Laurent, qu'une multiplication de H_y par ϵ correspond, dans l'espace de Fourier, à une multiplication du vecteur \mathbf{H} par la matrice Toeplitz associée à ϵ_i et qui sera noter $[\epsilon]$.

La résolution du problème avec cette méthode fonctionne à peu près mais elle comporte cependant un inconvénient de taille : la convergence est plutôt longue [65, 66, 68]. C'est pourquoi nous utiliserons une autre règle dite règle inverse afin de poursuivre nos calculs. Elle consiste à calculer la série de Fourier de la fonction $\frac{1}{\epsilon}$ puis de créer la matrice Toeplitz correspondante $\left[\frac{1}{\epsilon} \right]$. Il restera ensuite à utiliser l'inverse de cette matrice. Cette technique est celle qui a permis aux méthodes modales de Fourier de converger correctement. Introduite empiriquement dans deux articles parus côte à côte dans le même journal [65, 66], c'est Lifeng Li [68] qui a fournit l'explication mathématique de cette meilleure convergence. Le système d'équation, écrit sous forme matricielle, qu'il faut finalement résoudre est :

$$\partial_z^2 \mathbf{H} = \left[\frac{1}{\epsilon} \right]^{-1} \left([\alpha][\epsilon]^{-1}[\alpha] - k^2 \right) \mathbf{H} \quad (2.53)$$

Cette équation peut être mise sous la forme

$$\partial_z^2 \mathbf{H} = \mathbf{M} \mathbf{H} \quad (2.54)$$

Ainsi, la résolution de cette équation utilisera les mêmes mécanismes que pour la polarisation TE.

La seule différence provient ensuite des conditions de passage d'une couche à une autre. En effet, dans le cas de la polarisation TM, les quantités qui assument les conditions de continuité sont H_y et $E_x = \frac{\partial_z H_y}{i\omega\epsilon_0\epsilon(x)}$. Cette différence modifie la matrice de diffusion pour une interface :

$$\mathbf{S} = \begin{bmatrix} \mathbf{U}^i & -\mathbf{U}^{i+1} \\ \left[\frac{1}{\epsilon}\right]^i \mathbf{U}^i \mathbf{\Gamma}^i & \left[\frac{1}{\epsilon}\right]^{i+1} \mathbf{U}^{i+1} \mathbf{\Gamma}^{i+1} \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} -\mathbf{U}^i & \mathbf{U}^{i+1} \\ \left[\frac{1}{\epsilon}\right]^i \mathbf{U}^i \mathbf{\Gamma}^i & \left[\frac{1}{\epsilon}\right]^{i+1} \mathbf{U}^{i+1} \mathbf{\Gamma}^{i+1} \end{bmatrix} \quad (2.55)$$

2.3 Stretching et Perfectly Matched Layer

Dans la suite de ce manuscrit, j'aurai besoin de simuler des structures à base de métaux avec de fines couches de diélectriques afin d'engendrer des gap-plasmons. La partie diélectrique est très anodine par rapport à la taille de la structure complète, alors que c'est elle qui contrôle complètement la réponse optique. De ce fait, les simulations requièrent un grand nombre de modes afin de modéliser au mieux la géométrie et cela conduit ainsi à un temps de calcul assez élevé. De plus, la discontinuité de la fonction ϵ le long de l'axe x diminue encore la rapidité de convergence. Pour résoudre ce problème et améliorer la convergence des méthodes de calcul, j'ai eu recours à une méthode de stretching[70, 71], dite aussi d'étirement des coordonnées. Cette méthode emploie un changement de coordonnées afin de décrire plus précisément le champ aux interfaces entre les métaux et le diélectrique. Ces changements de coordonnées sont caractéristiques de la méthode C[72] développée il y a plusieurs décennies à Clermont-Ferrand. Ce type d'approche, utilisé ici dans le cadre d'une méthode numérique, est aujourd'hui connu sous le nom d'optique transformationnelle[73].

Je présente ici le changement de coordonnées pour une structure périodique formée de deux matériaux distincts de permittivité ϵ_1 et ϵ_2 (voir figure 2.5 à gauche).

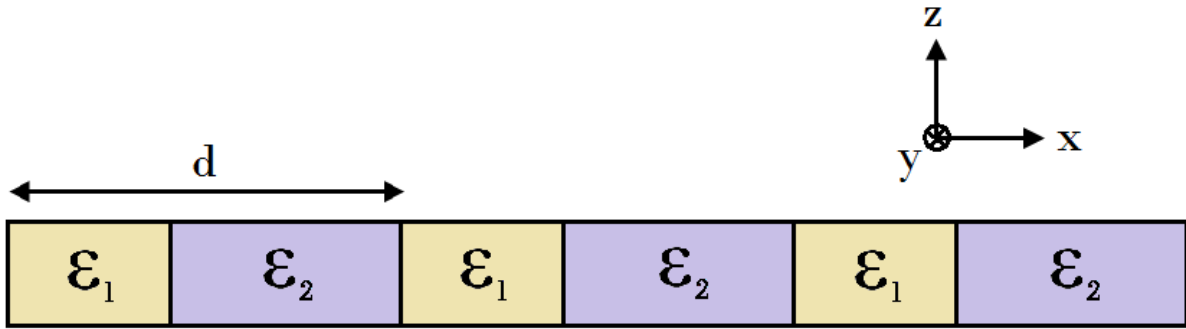


FIGURE 2.5 – Schéma d'une structure périodique en x à gauche. Changement de coordonnées pour différentes valeurs de η à droite (image tirée de l'article de Gérard Granet de 1999[70])

Par un changement de coordonnées, nous allons passer d'un système (x, y, z) à un nouveau système de coordonnées (u, y, z) avec $u=f(x)$. La fonction f est considérée définie par morceaux sur chacune des zones de la structure. Ce changement de coordonnées est nommé stretching car il revient en réalité à étirer l'espace par endroit ou à le resserrer. Sur la figure 2.5 à droite est représenté le changement de coordonnées. On peut voir que pour les anciennes coordonnées, les parties proches des interfaces représentent une petite variation de coordonnées alors que pour les nouvelles la variation est grande. Pour les parties au centre des matériaux c'est l'inverse qu'il se produit. Si on considère que pour les anciennes coordonnées les points de discrétisation

en différences finies sont régulièrement espacés, alors cela signifie que pour les nouvelles coordonnées il en sera autrement. Le nombre de points sera le même mais la répartition changera grandement. En effet, les points aux bords des matériaux seront très proches et la distance les séparant augmentera lorsqu'on s'éloignera du bord. Ce changement agira ainsi comme si nous placions plus de points de discrétisation près des interfaces et moins au centre des matériaux. C'est la variable η , comprise entre 0 et 1, qui régit le taux d'étirement. En partant d'un intervalle $[a, b]$ dans le système originel pour arriver à un intervalle $[a', b']$ dans le nouveau système, nous pouvons définir la fonction $f_{[a,b]}$ sur le nouvel intervalle :

$$f_{[a,b]}(x) = a + \frac{b-a}{b'-a'} \left(x - a' - \frac{\eta(b'-a')}{2\pi} \sin \left(2\pi \frac{x-a'}{b'-a'} \right) \right) \quad (2.56)$$

On considère que cette fonction est nulle en dehors de l'intervalle. Ainsi :

$$f'_{[a,b]}(x) = \frac{b-a}{b'-a'} \left(1 - \eta \cos \left(2\pi \frac{x-a'}{b'-a'} \right) \right) \quad (2.57)$$

Nous pouvons aussi définir les coefficients de Fourier correspondant lorsque $n \neq 0$

$$f_{[a,b]}^{(n)} = -\frac{1}{2i\pi} \frac{b-a}{b'-a'} \left[\frac{1}{n} + \frac{1}{2}\eta \left(\frac{b'-a'}{d_x - n(b'-a')} - \frac{b'-a'}{d_x + n(b'-a')} \right) \right] \left(e^{-\frac{2i\pi b'n}{d_x}} - e^{-\frac{2i\pi a'n}{d_x}} \right) \quad (2.58)$$

et lorsque $n = 0$, $f_{[a,b]}^{(0)} = \frac{b'-a'}{d_x}$.

La définition initiale de f entraîne :

$$\partial_x = \frac{\partial u}{\partial x} \partial_u \quad (2.59)$$

$$= \frac{1}{f'(u)} \partial_u \quad (2.60)$$

Nous pouvons donc reprendre les équations de Maxwell et les reformuler en effectuant des changements de variables et en faisant petit à petit apparaître des dérivées spatiales sur les nouvelles coordonnées :

$$\begin{cases} \partial_y E_z - \partial_z E_y = i\omega\mu_0\mu \frac{1}{f'(u)} f'(u) H_x \\ \partial_z(f'(u)E_x) - \partial_u E_z = i\omega\mu_0\mu f'(u) H_y \\ \partial_u E_y - \partial_y(f'(u)E_x) = i\omega\mu_0\mu f'(u) H_z \end{cases} \quad (2.61)$$

et

$$\begin{cases} \partial_y H_z - \partial_z H_y = -i\omega\epsilon_0\epsilon \frac{1}{f'(u)} f'(u) E_x \\ \partial_z(f'(u)H_x) - \partial_u H_z = -i\omega\epsilon_0\epsilon f'(u) E_y \\ \partial_u H_y - \partial_y(f'(u)H_x) = -i\omega\epsilon_0\epsilon f'(u) E_z \end{cases} \quad (2.62)$$

En définissant \vec{E}' et \vec{H}' tels que

$$\vec{E}' = \begin{bmatrix} f'(u) E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} \quad (2.63)$$

et

$$\vec{H}' = \mu_0 c \begin{bmatrix} f'(u) H_x \\ H_y \\ H_z \end{bmatrix} \quad (2.64)$$

alors les équations de Maxwell deviennent :

$$\begin{cases} \partial_y E'_z - \partial_z E'_y = ik\mu \frac{1}{f'(u)} H'_x \\ \partial_z E'_x - \partial_u E'_z = ik\mu f'(u) H'_y \\ \partial_u E'_y - \partial_y E'_x = ik\mu f'(u) H'_z \end{cases} \quad (2.65)$$

et

$$\begin{cases} \partial_y H'_z - \partial_z H'_y = ik\epsilon \frac{1}{f'(u)} E'_x \\ \partial_z H'_x - \partial_u H'_z = ik\epsilon f'(u) E'_y \\ \partial_u H'_y - \partial_y H'_x = ik\epsilon f'(u) E'_z \end{cases}, \quad (2.66)$$

Cela revient à dire que le problème est maintenant celui de la résolution des équations de Maxwell pour une structure avec des matériaux inhomogènes et anisotropes mais ayant des axes optiques parallèles aux axes du repère. En effet, on peut tout à fait écrire ce système en faisant apparaître des permittivités et perméabilités tensorielles “artificielles” :

$$\begin{cases} \partial_y E_z - \partial_z E_y = ik\mu_x H_x \\ \partial_z E_x - \partial_x E_z = ik\mu_y H_y \\ \partial_x E_y - \partial_y E_x = ik\mu_z H_z \end{cases} \quad (2.67)$$

et

$$\begin{cases} \partial_y H_z - \partial_z H_y = ik\epsilon_x E_x \\ \partial_z H_x - \partial_x H_z = ik\epsilon_y E_y \\ \partial_x H_y - \partial_y H_x = ik\epsilon_z E_z \end{cases} \quad (2.68)$$

où $\mu_x = \mu/f'(x)$, $\mu_y = f'(x)$, $\mu_z = f'(x)$, $\epsilon_x = \epsilon/f'(x)$, $\epsilon_y = f'(x)$ et $\epsilon_z = f'(x)$.

Dans les calculs suivants, je ne vais plus considérer une onde polarisée en TE ou TM mais une onde quelconque comprenant ainsi les deux polarisations. Pour chaque couche, le problème peut être écrit :

$$\begin{aligned} \partial_z E_x &= ik\mu_y H_y - \frac{1}{ik} \partial_x \left(\frac{1}{\epsilon_z} \partial_x H'_y \right) + \frac{1}{ik} \partial_x \left(\frac{1}{\epsilon_z} \partial_y H'_x \right) \\ \partial_z E_y &= -ik\mu_x H'_x + \frac{1}{ik} \partial_y \left(\frac{1}{\epsilon_z} \partial_y H'_x \right) - \frac{1}{ik} \partial_y \left(\frac{1}{\epsilon_z} \partial_x H'_y \right) \end{aligned} \quad (2.69)$$

et

$$\begin{aligned} \partial_z H_x &= ik\epsilon_y E_y - \frac{1}{ik} \partial_x \left(\frac{1}{\mu_z} \partial_x E_y \right) + \frac{1}{ik} \partial_x \left(\frac{1}{\mu_z} \partial_y E_x \right) \\ \partial_z H_y &= -ik\epsilon_x E_x + \frac{1}{ik} \partial_y \left(\frac{1}{\mu_z} \partial_y E_x \right) - \frac{1}{ik} \partial_y \left(\frac{1}{\mu_z} \partial_x E_y \right) \end{aligned} \quad (2.70)$$

Toutes les permittivités et perméabilités sont périodiques selon l'axe x . Ainsi, il est possible d'appliquer le théorème de Bloch au problème et donc de dire que les champs ont la forme

$$\begin{aligned} E_x &= \sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n^{(1)}(z) e^{i(\alpha_n x)} \\ E_y &= \sum_{n=-\infty}^{+\infty} E_n^{(2)}(z) e^{i(\alpha_n x)} \\ H_x &= \sum_{n=-\infty}^{+\infty} H_n^{(1)}(z) e^{i(\alpha_n x)} \\ H_y &= \sum_{n=-\infty}^{+\infty} H_n^{(2)}(z) e^{i(\alpha_n x)} \end{aligned} \quad (2.71)$$

avec $\alpha_n = \alpha_0 + \frac{2\pi n}{d_x}$. La valeur de α_0 sera déterminée par l'onde plane incidente et sera la même que dans l'espace initial (avant le changement de coordonnées).

Comme dans la partie précédente, nous choisissons de tronquer le développement et donc de ne sommer que n termes allant de $-N$ à N . Nous définissons donc quatre vecteurs \mathbf{E}_x , \mathbf{E}_y , \mathbf{H}_x et \mathbf{H}_y . Cela nous permet d'écrire les systèmes 2.69 et 2.70 sous forme matricielle :

$$\partial_z \begin{bmatrix} \mathbf{E}_x \\ \mathbf{E}_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & ik[\mu_y] - \frac{1}{ik}[\alpha][\epsilon_z]^{-1}[\alpha] \\ -ik[\mu_x] & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{H}_x \\ \mathbf{H}_y \end{bmatrix} = \mathbf{L}_{EH} \begin{bmatrix} \mathbf{H}_x \\ \mathbf{H}_y \end{bmatrix} \quad (2.72)$$

et

$$\partial_z \begin{bmatrix} \mathbf{H}_x \\ \mathbf{H}_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & -ik[\epsilon_y] + \frac{1}{ik}[\alpha][\mu_z]^{-1}[\alpha] \\ ik[\epsilon_x] & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{E}_x \\ \mathbf{E}_y \end{bmatrix} = \mathbf{L}_{HE} \begin{bmatrix} \mathbf{E}_x \\ \mathbf{E}_y \end{bmatrix}. \quad (2.73)$$

La matrice $[\alpha]$ est diagonale, et contient $2N + 1$ fois α_n . La construction des matrices $[\epsilon_i]$ et $[\mu_i]$ est plus complexe et requiert les coefficients de Fourier de $f'(x)$ définis précédemment par l'équation 2.58. Puisque ϵ est constant sur des domaines rectangulaires, le problème est séparable. On peut calculer la série de Fourier en x de $\epsilon f'(x)$ en multipliant la matrice Toeplitz associée à la série de $f'(x)$ à chaque intervalle par la valeur de ϵ_y . Pour calculer $[\epsilon_x]$, il faudra calculer la matrice Toeplitz correspondant aux coefficients de Fourier de $\frac{1}{f'(x)}$ et la multiplier à ϵ . Enfin, pour ϵ_z , il suffit de calculer la matrice Toeplitz de la série $f'(x)$. Le plus simple est de prendre pour chaque intervalle la longueur du matériau et de l'envoyer sur lui-même dans les nouvelles coordonnées.

Finalement, le problème peut s'écrire

$$\partial_z^2 \begin{bmatrix} \mathbf{E}_x \\ \mathbf{E}_y \end{bmatrix} = \mathbf{L}_{EH} \mathbf{L}_{HE} \begin{bmatrix} \mathbf{E}_x \\ \mathbf{E}_y \end{bmatrix}. \quad (2.74)$$

ou

$$\partial_z^2 \begin{bmatrix} \mathbf{H}_x \\ \mathbf{H}_y \end{bmatrix} = \mathbf{L}_{HE} \mathbf{L}_{EH} \begin{bmatrix} \mathbf{H}_x \\ \mathbf{H}_y \end{bmatrix}. \quad (2.75)$$

Nous retrouvons alors la forme $\partial_z^2 \mathbf{E} =_{\mathbf{M}} \mathbf{E}$ ou $\partial_z^2 \mathbf{H} =_{\mathbf{M}} \mathbf{H}$. En faisant apparaître la matrice diagonale \mathbf{D} et la matrice \mathbf{U} comme précédemment, les champs peuvent s'écrire

$$E_x = \sum_{n=-N}^N \sum_k \mathbf{U}_{nk}^{(1)} \left(A_k^+ e^{i\gamma_k(z-z_i)} + B_k^+ e^{-i\gamma_k(z-z_i)} \right) e^{i(\alpha_n x)}, \quad (2.76)$$

$$E_y = \sum_{n=-N}^N \sum_k \mathbf{U}_{nk}^{(2)} \left(A_k^+ e^{i\gamma_k(z-z_i)} + B_k^+ e^{-i\gamma_k(z-z_i)} \right) e^{i(\alpha_n x)}, \quad (2.77)$$

$$H_x = \sum_{n=-N}^N \sum_k \mathbf{U}_{nk}^{(1)} \left(A_k^+ e^{i\gamma_k(z-z_i)} + B_k^+ e^{-i\gamma_k(z-z_i)} \right) e^{i(\alpha_n x)}, \quad (2.78)$$

$$H_y = \sum_{n=-N}^N \sum_k \mathbf{U}_{nk}^{(2)} \left(A_k^+ e^{i\gamma_k(z-z_i)} + B_k^+ e^{-i\gamma_k(z-z_i)} \right) e^{i(\alpha_n x)}, \quad (2.79)$$

où $\gamma_k = \sqrt{\lambda_k}$. Les conditions de passage aux interfaces entre deux couches de la structure s'écrivent de la même façon que dans la partie précédente et nous pourrions nous y reporter pour résoudre le problème total grâce au cascading des matrices \mathbf{S} .

L'utilisation de stretching améliore grandement la convergence des calculs. En effet, pour une même structure, il faut au moins deux fois moins de modes lorsque $\eta = 0.9$ que lorsque $\eta = 0$. Sachant que le temps de calcul t varie en fonction du nombre de modes n à calculer en t^n , on peut aisément imaginer le temps gagné grâce à cette méthode. Afin de bien montrer le gain en convergence, je présente ici une courbe de convergence pour le calcul de la constante de propagation k_x d'un gap-plasmon le long d'un film diélectrique d'épaisseur 10 nm cernée par deux couches métalliques épaisses (voir figure 2.3).

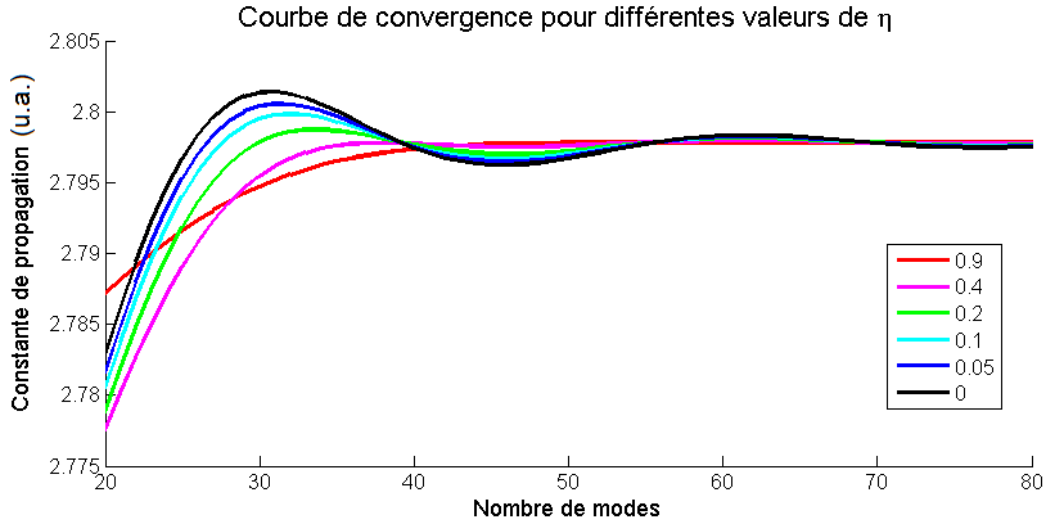


FIGURE 2.6 – Courbe de convergence du problème aux valeurs propres d'une couche d'air de 10 nm enfermée entre deux blocs métalliques

Au delà de la meilleure convergence qu'apporte la technique de l'étirement de coordonnées à la méthode modale de Fourier, cette méthode a un intérêt supplémentaire. Elle permet extrêmement simplement d'implémenter des Perfect Matching Layers (PML). Les PML sont des artifices numériques. Elles ont d'abord été introduites par Berenger[74] puis améliorées par d'autres équipes[75, 76, 77] et elles sont maintenant utilisées dans absolument tous les types de codes. Les PML agissent comme matériaux absorbant ne réfléchissant aucune fréquence quelque soit l'angle d'incidence même en étant accolées à un matériau métallique. Étudier une structure périodique, bien des fois, n'est absolument pas problématique. Mais il arrive, pour des raisons physiques, qu'on ne souhaite pas une telle périodicité. Dans ce cas, ajouter des PML est une solution très efficace et très largement répandue.

Dans le cadre de la méthode modale de Fourier, les PML peuvent être tout simplement vues comme un étirement de l'espace avec des coordonnées complexes. Tout se passe comme pour un changement de coordonnées mis à part que la fonction $f(x)$ est maintenant remplacée par la fonction $s(x)$ telle que

$$s_i(x) = 1 + i\sigma_i(x) \quad (2.80)$$

où $\sigma_i(x)$ est une fonction à valeurs réelles de la variable réelle.

Les PML absorbent toutes les ondes. En plaçant des PML sur les bords de la structure, il est possible de briser sa périodicité. Ainsi nous pouvons isoler un nanocube seul. Cela est très pratique car cela élimine l'apparition de plasmons de surface. En effet, ces plasmons sont excités par la périodicité des nanocubes (qui forment ainsi un réseau) et se propagent entre

ces derniers. Ils interagissent avec les structures dans les simulations alors que dans la réalité, les cubes se placent aléatoirement et non en réseau ce qui diminue l'importance des plasmons de surface. Donc l'utilisation des PML est recommandé pour que les simulations soient plus proches de la réalité.

Nous pouvons, par exemple, voir l'effet de PML sur une structure dont nous aurons besoin dans le chapitre suivant. Nous cherchons à trouver le module et la phase du coefficient de réflexion d'un gap-plasmon au bord d'un guide métallique. Pour cela, nous utilisons deux couches : la première comportant dans l'ordre du métal, du diélectrique, du métal et des PML ou du métal alors que la seconde composée de métal, diélectrique, air, PML ou air. Nous regardons ensuite le module et la phase du coefficient de réflexion du gap-plasmon (voir figure 2.7). Sur ces deux courbes, nous pouvons remarquer qu'en l'absence de PML, les valeurs du module et de la phase ne sont pas stables. Lors de l'apparition de nouveaux modes, il y a même un saut systématique. Cependant, en utilisant des PML, les valeurs sont plus stables au moins pour les périodes pas trop grandes. Il n'est donc pas nécessaire de considérer de trop grands domaines de simulation. De plus, on peut voir que pour la phase du coefficient, les PML rendent la valeur presque constante, ce qui est important puisque c'est cette phase qui aura une grande importance pour la détermination de la position exacte des résonances grâce aux modèles exposés dans le chapitre suivant.

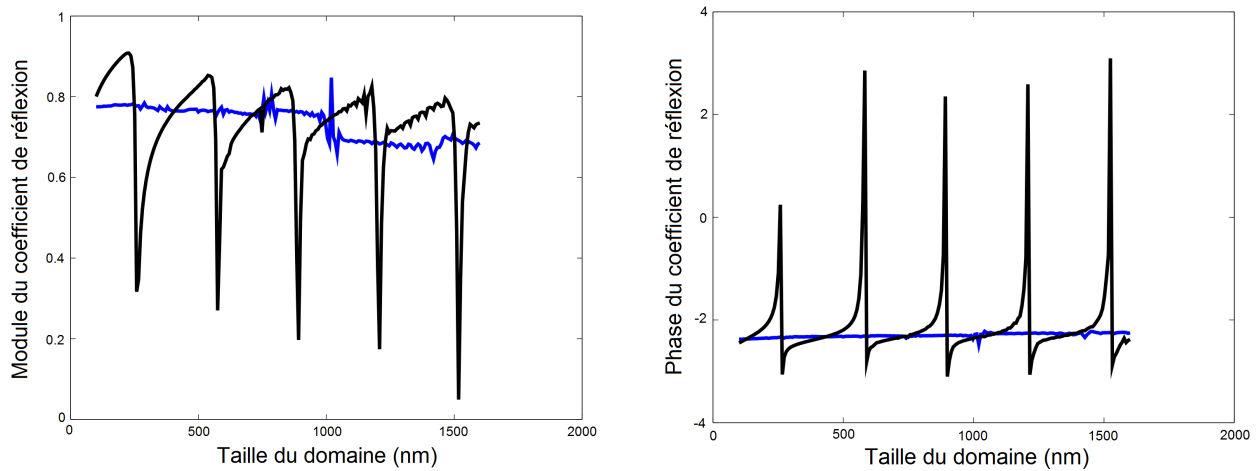


FIGURE 2.7 – Module (en haut) et phase (en bas) du coefficient de réflexion du gap-plasmon au bord de la cavité qu'il parcourt. En noir, les simulations sont obtenues sans utilisation de PML alors qu'en bleu, des PML sont appliquées

Nous avons vu dans ce chapitre comment on pouvait mettre en œuvre des méthodes de résolution des équations de Maxwell qui soient spécifiques. Ces méthodes numériques spécifiques sont en général beaucoup moins gourmandes que les méthodes généralistes, au prix cependant d'une liberté dans la définition géométrique de la structure moindre. La méthode modale de Fourier, couplée à une technique d'étirement des coordonnées présente de nombreux avantages supplémentaires par rapport à une méthode sans étirement. La convergence, particulièrement dans le cadre de la plasmonique, est largement améliorée, et il est possible d'ajouter très simplement des Perfect Matching Layers qui vont permettre d'éviter des effets gênants liés à la périodicité. Enfin, et cela va s'avérer très important par la suite, ces méthodes donnent accès

aux coefficients de réflexion et de transmission des modes, des grandeurs physiques importantes pour la compréhension et la modélisation, mais que les autres méthodes numériques ne fournissent pas facilement. J'ai donc eu l'occasion de coder cette méthode de manière à ce qu'elle soit facilement réutilisable et que la géométrie puisse être simplement décrite sans avoir besoin de modifier profondément le code. Cela facilitera une utilisation future par d'autres membres de l'équipe.

CHAPITRE 3

CONTRÔLE INTERFÉROMÉTRIQUE DE L'ABSORPTION DANS LES RÉSONATEURS À GAP-PLASMON

Depuis quelques années maintenant, les nano-antennes plasmoniques ont beaucoup attiré l'attention du fait du nombre élevé d'applications potentielles[50], que ce soit pour la détection de molécules d'intérêt biologique, ou pour l'exaltation de fluorescence via l'effet Purcell - le fait qu'une molécule fluorophore voit son temps de vie diminué à proximité d'une de ces nano-antennes. Parmi ces nano-antennes, les nanoparticules déposées sur un film métallique ont un statut particulier. Les nano-sphères ont permis par exemple de mettre en évidence les limites du modèle de Drude pour la description de la réponse optique des métaux[78].

Les nano-antennes qui nous intéressent ici sont les résonateurs à gap-plasmon, et plus particulièrement ceux basés sur les nanocubes synthétisés chimiquement. En effet, ils sont peu coûteux, facile à fabriquer et possèdent des propriétés optiques inégalées. Bien que les nanocubes aient été fortement étudiés[56, 41], l'influence de l'angle d'incidence de la lumière excitatrice reste mal connu pour toute une catégorie de résonateurs[79]. Or cette dépendance angulaire peut s'avérer primordiale pour certaines applications comme le biosensing[46].

Nous présenterons donc, dans ce chapitre, un modèle qui décrit chaque résonateur comme une cavité de Fabry-Pérot excitée bidimensionnelle de chaque côté. Ce modèle permet de bien modéliser un résonateur à gap-plasmon, même s'il s'agit d'un patch carré et donc d'une structure tridimensionnelle, montrant ainsi que cette structure est un exemple de contrôle interférométrique de l'absorption[80]. Notamment, nous exprimerons analytiquement les pertes induites par les résonances dans la cavité pour montrer comment certaines sont supprimées et d'autres renforcées par le fait que la cavité soit excitée des deux côtés à la fois. Nous pourrons relier ces pertes à l'angle d'incidence, car le déphasage induit par un changement d'angle se répercute sur la suppression ou le renforcement des modes. Ce modèle nous permettra donc entre autres, d'expliquer la diminution ou l'augmentation de l'absorption d'une résonance lors d'un changement d'angle d'incidence.

3.1 Modélisation des nano-antennes patch

3.1.1 Réponse optique de l'antenne patch

Le système analysé dans ce chapitre se compose d'un substrat métallique recouvert d'un film diélectrique lui-même recouvert de patches métalliques. Le substrat métallique peut être

constitué de divers métaux. L'or et l'argent sont néanmoins les deux matériaux les plus souvent utilisés dans les expérimentations et l'or a bien souvent la préférence parce qu'il ne s'oxyde pas.

Le mécanisme de la résonance, décrit dans le chapitre 1, est identique pour les patchs tels que ceux représentés figure 3.1 et les patchs carrés. Pour les patchs carrés le gap-plasmon est cependant sensible aux bords, qui se situent à distance finie. Le mode qui se propage sous les patchs possède un indice effectif moins grand que celui prévu par la relation de dispersion du gap-plasmon théorique. Cela occasionne un décalage de la résonance vers le bleu de façon systématique[41]. Mais tous les effets que nous allons étudier sont bien présents, notamment le renforcement de la résonance fondamentale, et l'apparition de résonances supplémentaires hors de l'incidence normale[46]. Pour un travail sur la détection de molécules, l'excitation de ces résonance est même cruciale, puisqu'elle confère à la structure une bien meilleure résolution.

Le film diélectrique est bien souvent composé de matériaux organiques. C'est le cas par exemple pour les films déposés par trempages successifs dans des bains de polymères comme ceux présentés dans le chapitre suivant. Pour nos simulations, nous choisissons d'utiliser un indice $n_d = 1.54$, représentatif des indices des matériaux organiques transparents. L'épaisseur du film a très grande importance car elle joue sur la position de la résonance via l'indice effectif du gap-plasmon. Elle peut varier de 1 nanomètre à quelques dizaines. Aux épaisseurs comprises entre 1 et 5 nanomètres, des phénomènes qui ne sont pas décrits par le modèle de Drude sont cependant susceptibles d'intervenir, comme la non-localité. Il convient donc d'être prudent quant à la validité des simulations - même si on ne risque essentiellement qu'un décalage de la résonance par rapport à la réalité.

Pour simuler ces résonateurs, nous utiliserons les codes présentés dans le chapitre précédent. La structure 3.1 est constituée de patchs infinis dans la direction y et de forme cubique dans le plan (xOz) (voir figure 3.1). Il serait possible de modéliser la structure en 3D en utilisant des codes modaux de multicouches faites de réseaux dans les deux directions restantes. Ces simulations sont cependant très coûteuses et rendraient la modélisation beaucoup plus compliquée, sans pour autant faire apparaître de nouveaux phénomènes. Ici, puisque les gap-plasmons ne sont excités qu'en polarisation TM, les structures ne répondent pas optiquement en polarisation TE. Nous nous concentrerons donc exclusivement sur la polarisation TM.

Une première approche est de considérer le résultat de simulations directes pour bien comprendre le comportement physique de la structure. Regardons par exemple un spectre de la réflectivité en fonction de la taille des nanopatchs (voir figure 3.2). La structure est éclairée par une onde monochromatique de longueur d'onde 800 nm avec un angle d'incidence de 0° (en rouge) ou de 20° (en bleu). Les nanopatchs ont une largeur allant de 50 nm à 250 nm et une hauteur fixe de 62 nm (soit la largeur de la première résonance) et l'épaisseur de diélectrique choisie est ici 7 nm. Tout d'abord nous pouvons observer des résonances, qui se traduisent par un coefficient de réflexion qui se rapproche de zéro. Étant donné que la transmission à travers la plaque métallique servant de substrat est considérée comme nulle, ces résonances correspondent à l'absorption maximale de la lumière par la structure. Nous pouvons remarquer que des résonances supplémentaires apparaissent lorsque l'angle d'incidence de l'onde plane n'est pas nul. De plus, nous pouvons voir que la structure résonne à intervalles réguliers : c'est le signe que le patch se comporte comme une cavité. L'écart entre chacune des résonances pour l'incidence normale est rigoureusement égal à la longueur d'onde effective du gap-plasmon λ_{eff} . Le patch est donc bien une cavité pour le gap-plasmon. En se penchant sur les cartes du champ H_y de la structure pour chacune des résonances, nous observons que le nombre de ventres augmente avec la largeur du patch. Ainsi le champ de la première résonance présente un ventre, celui de la

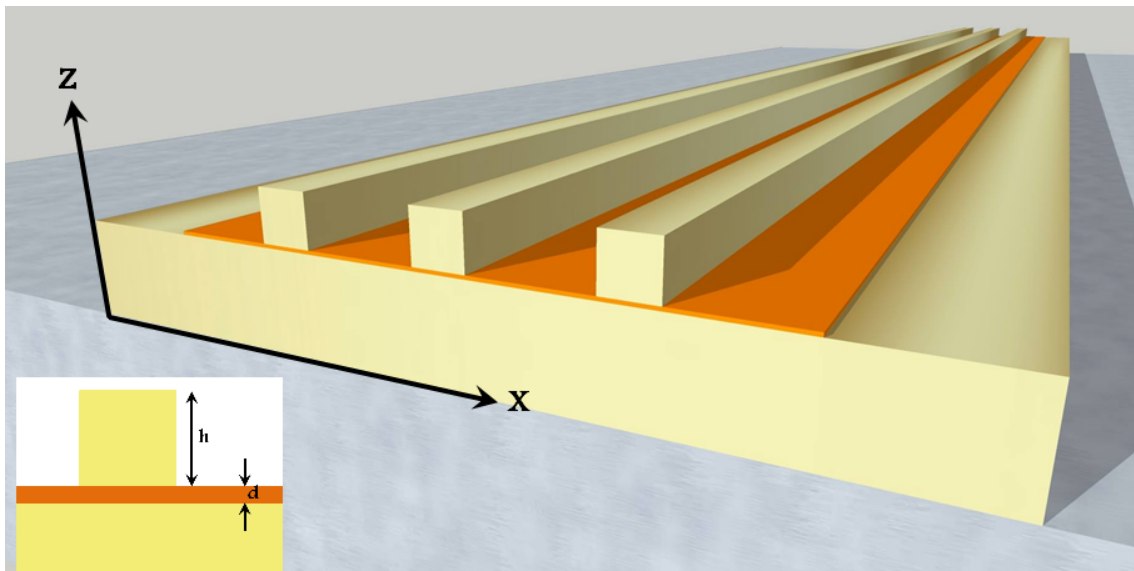


FIGURE 3.1 – Schéma 3D de la structure étudiée avec une coupe perpendiculaire à l'axe y avec les dimensions du problème en 2D

deuxième (excitable seulement hors incidence normale) deux ventres et enfin celui de la dernière trois ventres. C'est cohérent avec l'image d'une résonance de cavité. En effet, une résonance se produit lorsque le champ présente un nombre entier de ventres. Ainsi si nous augmentions encore la taille du patch, d'autres résonances apparaîtraient avec un champ fait d'un nombre de ventres plus important.

3.1.2 Contrôle interférentiel

On peut comprendre la disparition de certaines résonances en incidence normale comme des interférences destructives entre résonances. Dans une résonance de cavité, les ventres successifs sont en réalité en opposition de phase. Si une résonance présente un nombre pair de ventres, et qu'on suppose que le premier ventre excité sert de référence de phase pour une excitation venant de la gauche, par exemple, alors le dernier ventre sera excité en opposition de phase avec le premier. Or si la cavité est excitée des deux côtés, alors le premier ventre de la résonance excitée par la droite du patch, cette fois, est forcément exactement en opposition de phase avec le ventre excité depuis la gauche du patch. Donc la résonance excitée par la gauche et celle excitée par la droite sont de façon générale partout en opposition de phase : elles s'annulent (voir une illustration simple figure 3.3). Cela n'est cependant exact qu'en incidence normale. En effet, hors incidence normale on peut considérer que les excitations de part et d'autre du patch sont déphasées. Les résonances ne sont plus rigoureusement en opposition de phase. La résonance produit de l'absorption et peut être vue sur le spectre.

C'est cette analyse qui guide forcément vers un modèle de cavité excitée des deux côtés, car c'est le seul modèle qui explique pourquoi certaines résonances ne sont pas excitées. Une autre conséquence que l'on peut anticiper est que les résonances présentant un nombre impair de ventre ne subissent pas d'interférences destructives. Au contraire, comme les ventres aux extrémités sont en phase, l'amplitude des résonances est deux fois plus grande que si la cavité avait été excitée d'un seul côté. Cela signifie que l'absorption liée à ces résonances, proportionnelle au carré du champ, doit être 4 fois plus grande que si la cavité avait été excitée d'un seul côté. On peut supposer que en partie de là que les résonateurs de ce type possèdent une si grande

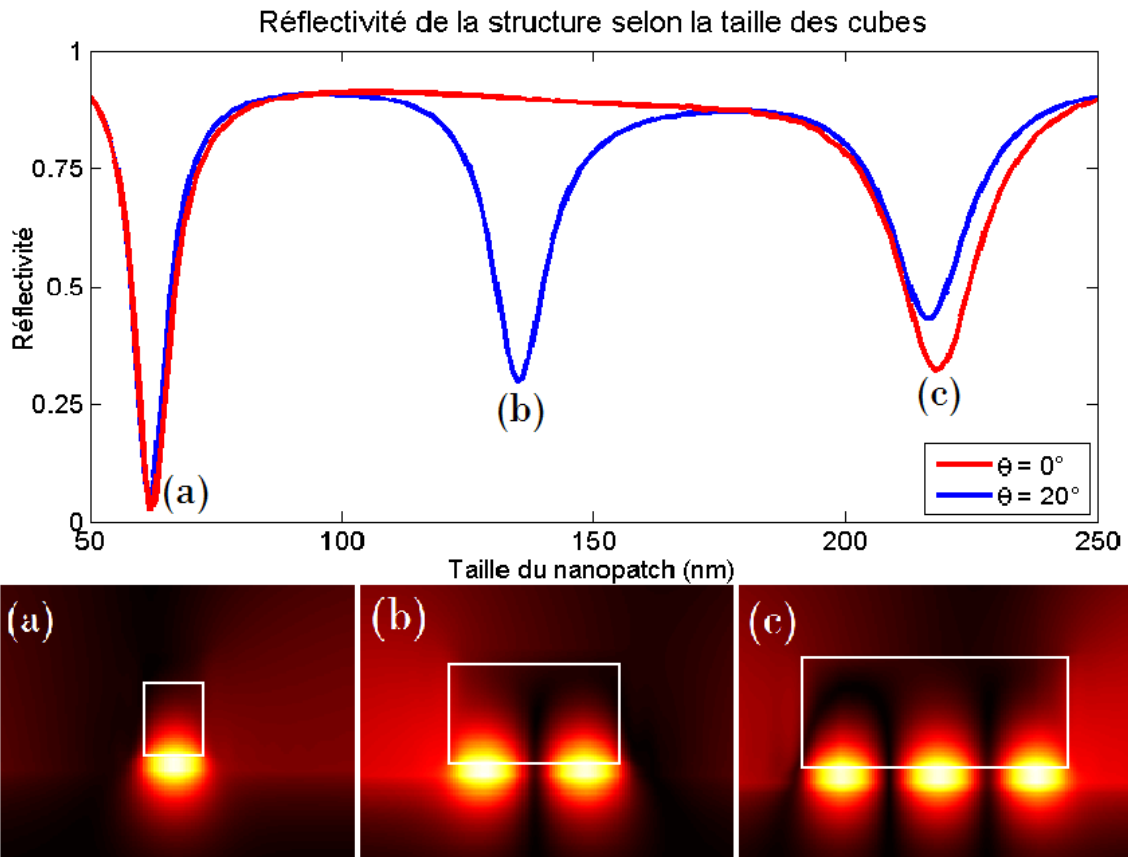


FIGURE 3.2 – Spectre de réflexion en fonction de la taille du patch (au-dessus) avec une onde incidente de longueur d’onde 800 nm et un angle d’incidence de 0° en rouge et 20° en bleu puis carte du champ H_y pour chacune des trois résonances (au-dessous : (a), (b) et (c)) avec un angle d’incidence de 20° . L’épaisseur de diélectrique est de 7 nm.

section efficace.

L’onde plane éclairant la structure atteint le cube puis se propage encore jusqu’au film diélectrique. L’onde excite alors de tous côtés une cavité de type Fabry-Pérot sous le nanopatch. À l’intérieur de cette cavité, les ondes se propagent de gauche à droite ou de droite à gauche en se réfléchissant totalement sur les bords à droite et à gauche de la cavité. Les deux ondes ayant été excitées par la même onde plane, leurs amplitudes et leurs coefficients de propagation sont les mêmes. La seule différence entre les deux ondes est la phase. En effet, avec un angle d’incidence non nul, l’onde plane initiale atteint le film diélectrique en avance d’un côté par rapport à l’autre. Le déphasage auquel on peut donc s’attendre est la différence de chemin optique entre le coin au bas à gauche du cube et celui en bas à droite.

Cette intuition physique, obtenue à partir du comportement des résonances, mérite d’être formalisée, et c’est l’objet de cette partie de mon travail.

3.2 Modèle interférométrique

On peut supposer tout d’abord que le problème est séparable. D’une part, il y a la dépendance en z , qui est simplement donnée par le profil du gap-plasmon, puisque c’est le seul mode à se propager sous le patch. D’autre part, la dépendance en x , elle, est directement liée à la vision

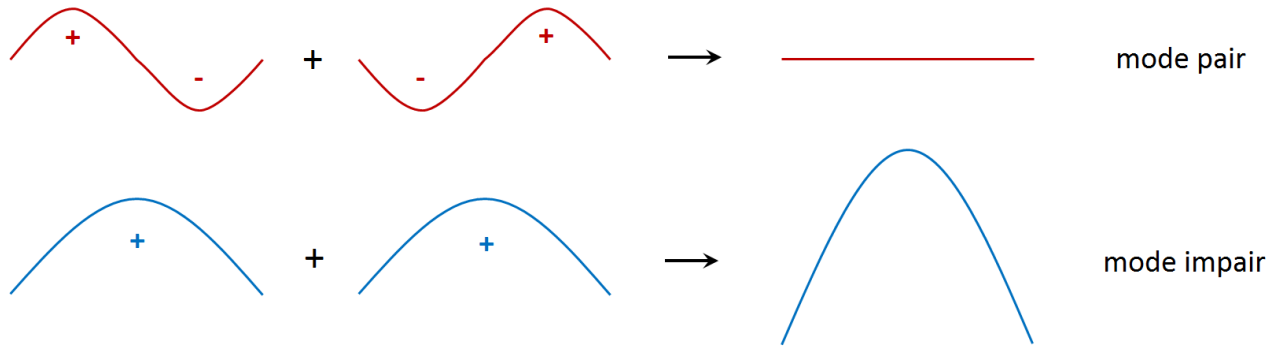


FIGURE 3.3 – Schématisation des interférences entre deux modes pairs ou deux modes impairs

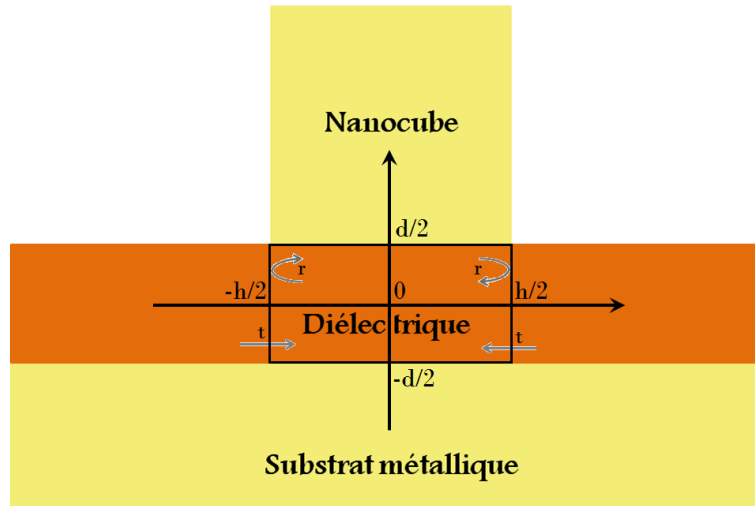


FIGURE 3.4 – Schéma 2D de la cavité de Fabry-Pérot utilisée pour le modèle

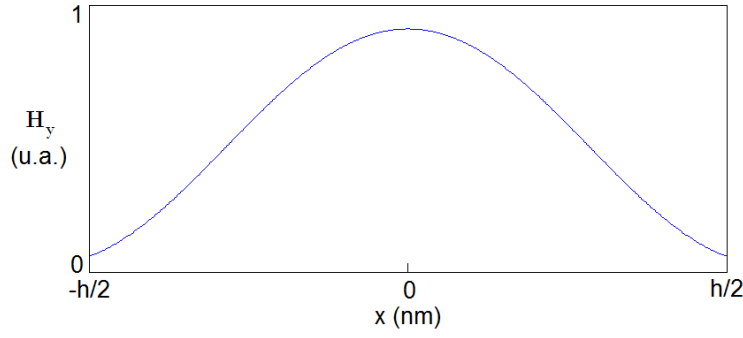
de l'interstice comme une cavité horizontale. En partant de cette hypothèse, il est possible de calculer l'allure de tous les champs, magnétiques et électriques, et donc des grandeurs comme l'absorption. Ces quantités pourront alors être comparées aux résultats des simulations.

3.2.1 Calcul du champ H_y

Pour le calcul du champ le long de la cavité (donc selon l'axe x), il faut considérer que deux modes se propageant dans des sens différents sont présents dans la cavité, et qu'ainsi l'amplitude totale du gap-plasmon peut s'écrire sous la forme classique

$$\mathcal{A}(x) = Ae^{i\alpha x} + Be^{-i\alpha x} \quad (3.1)$$

où α est le vecteur d'onde du gap-plasmon (voir figure 3.5 pour un profil typique de $\Re\mathcal{A}$). On suppose que de chaque côté de la cavité, se produit une réflexion du mode guidé et qu'il s'y produit une excitation du même mode, due à la forte présence d'un maximum du champ magnétique à l'entrée de l'interstice. L'excitation à gauche (respectivement à droite) est notée A_l (respectivement A_r).

FIGURE 3.5 – Profil du champ H le long d'une cavité Fabry-Pérot

Cette vision physique se traduit par deux équations, une pour chacun des bords de la cavités. On exprime que le gap-plasmon qui vient de chaque bord est le produit d'une réflexion qui se fait avec un coefficient r et de l'excitation. On suppose un coefficient t entre l'amplitude du champ magnétique excitateur et l'excitation ressentie par la cavité. On peut supposer que celui-ci puisse diminuer fortement pour les interstices très étroits, puisqu'en dessous de 3 nanomètres, il devient tout de même difficile d'exciter la résonance.

$$\begin{cases} Ae^{-i\alpha\frac{h}{2}} = tA_l + rBe^{i\alpha\frac{h}{2}} & \text{à l'extrémité gauche} \\ Be^{-i\alpha\frac{h}{2}} = tA_r + rAe^{i\alpha\frac{h}{2}} & \text{à l'extrémité droite} \end{cases} \quad (3.2)$$

Donc les coefficients A et B sont tels que :

$$\begin{cases} A = tA_l e^{i\alpha\frac{h}{2}} + rBe^{i\alpha h} \\ B = tA_r e^{i\alpha\frac{h}{2}} + rAe^{i\alpha h} \end{cases} \quad (3.3)$$

En remplaçant B dans l'expression de A , on obtient le système :

$$\begin{cases} A = tA_l e^{i\alpha\frac{h}{2}} + rtA_r e^{3i\alpha\frac{h}{2}} + r^2 A e^{2i\alpha h} \\ A = tA_r e^{i\alpha\frac{h}{2}} + rtA_l e^{3i\alpha\frac{h}{2}} + r^2 B e^{2i\alpha h} \end{cases} \quad (3.4)$$

Il est ensuite possible d'exprimer les coefficients A et B en fonction des coefficients A_l et A_r .

$$\begin{cases} A(1 - r^2 e^{2i\alpha h}) = te^{i\alpha h} (A_l e^{-i\alpha\frac{h}{2}} + rA_r e^{i\alpha\frac{h}{2}}) \\ B(1 - r^2 e^{2i\alpha h}) = te^{i\alpha h} (A_r e^{-i\alpha\frac{h}{2}} + rA_l e^{i\alpha\frac{h}{2}}) \end{cases} \quad (3.5)$$

$$\begin{cases} A = te^{i\alpha h} \frac{A_l e^{-i\alpha\frac{h}{2}} + rA_r e^{i\alpha\frac{h}{2}}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h}} \\ B = te^{i\alpha h} \frac{A_r e^{-i\alpha\frac{h}{2}} + rA_l e^{i\alpha\frac{h}{2}}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h}} \end{cases} \quad (3.6)$$

Ainsi, nous pouvons exprimer l'amplitude du gap-plasmon $\mathcal{A}(x)$ en fonction des amplitudes des ondes excitées, du vecteur d'onde du gap-plasmon, des coefficients de transmission et de réflexion au bord de la cavité et de la taille de la cavité :

$$\mathcal{A}(x) = te^{i\alpha h} \left\{ \left[\frac{A_l e^{-i\alpha\frac{h}{2}} + rA_r e^{i\alpha\frac{h}{2}}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h}} \right] e^{i\alpha x} + \left[\frac{A_r e^{-i\alpha\frac{h}{2}} + rA_l e^{i\alpha\frac{h}{2}}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h}} \right] e^{-i\alpha x} \right\} \quad (3.7)$$

Enfin, nous simplifions l'expression finale en incluant $te^{i\alpha h}$ avec les coefficients A_l et A_r dans des nouveaux coefficients A'_l et A'_r qui représentent les excitations *effectives* de part et d'autre de la cavité :

$$\mathcal{A}(x) = \left[A'_l \frac{e^{-i\alpha \frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + r e^{i\alpha \frac{h}{2}} e^{-i\alpha x}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h}} + A'_r \frac{r e^{i\alpha \frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + e^{-i\alpha \frac{h}{2}} e^{-i\alpha x}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h}} \right] \quad (3.8)$$

Nous avons écrit l'amplitude $\mathcal{A}(x)$ le long de l'axe x . À présent, nous devons prendre en compte le profil du gap-plasmon pour trouver la dépendance en z des champs. On peut utiliser directement le profil du gap-plasmon, représenté figure 3.6. Le gap-plasmon s'accompagne d'une queue exponentielle dans le métal de part et d'autre du diélectrique $a e^{\mp \kappa_1 z}$. Sa forme est en $b \cosh(\kappa_2 z)$ dans l'interstice.

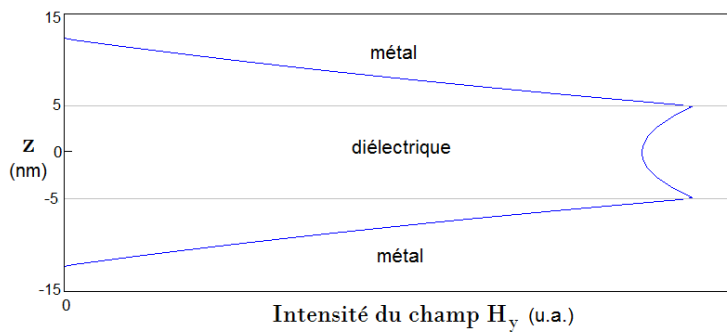


FIGURE 3.6 – Profil du champ H_y le long de l'axe z

À chaque interface, il y a conservation du champ H_y et de sa dérivée divisée par ϵ .

$$\begin{cases} b \cosh\left(\kappa_2 \frac{d}{2}\right) = a e^{-\kappa_1 \frac{d}{2}} \\ \frac{\kappa_2 b}{\epsilon_d} \sinh\left(\kappa_2 \frac{d}{2}\right) = -\frac{\kappa_1 a}{\epsilon_m} e^{-\kappa_1 \frac{d}{2}} \end{cases} \quad (3.9)$$

Ce système nous permet de retrouver la relation de dispersion du gap-plasmon[1] :

$$\frac{\kappa_2}{\epsilon_d} \tanh\left(\kappa_2 \frac{d}{2}\right) + \frac{\kappa_1}{\epsilon_m} = 0 \quad (3.10)$$

où $\kappa_1 = \sqrt{\alpha^2 - \epsilon_m k_0^2}$ et $\kappa_2 = \sqrt{\alpha^2 - \epsilon_d k_0^2}$.

Le modèle ne prédit pas l'amplitude absolue du gap-plasmon, mais seulement l'allure des variations en z et en x . Il faudrait d'autres arguments pour réussir à estimer la quantité d'énergie transférée à la résonance et le coefficient t . Par la suite, nous ferons donc le choix de poser $a = 1$ et nous aurons $b = \frac{e^{-\kappa_1 \frac{d}{2}}}{\cosh\left(\kappa_2 \frac{d}{2}\right)}$. Le champ H_y s'écrit, respectivement au dessus du diélectrique

($z > \frac{h}{2}$), dans le diélectrique ($z \in \left[-\frac{h}{2}, \frac{h}{2}\right]$) et en dessous du diélectrique ($z < -\frac{h}{2}$)

$$\begin{cases} H_y = \frac{1}{1 - r^2 e^{2i\alpha h}} \left[A'_l \left(e^{-i\alpha \frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + r e^{i\alpha \frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) + A'_r \left(r e^{i\alpha \frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + e^{-i\alpha \frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) \right] a e^{-\kappa_1 z} \\ H_y = \frac{1}{1 - r^2 e^{2i\alpha h}} \left[A'_l \left(e^{-i\alpha \frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + r e^{i\alpha \frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) + A'_r \left(r e^{i\alpha \frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + e^{-i\alpha \frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) \right] b \cosh(\kappa_2 z) \\ H_y = \frac{1}{1 - r^2 e^{2i\alpha h}} \left[A'_l \left(e^{-i\alpha \frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + r e^{i\alpha \frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) + A'_r \left(r e^{i\alpha \frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + e^{-i\alpha \frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) \right] a e^{\kappa_1 z} \end{cases} \quad (3.11)$$

À l'aide de ces équations, nous pouvons créer des cartes de champ du champ H_y . En se plaçant à la même longueur d'onde qu'une résonance comme la résonance (c) de la figure 3.2, nous obtenons la carte de champ présentée sur la figure 3.7. Nous pouvons voir apparaître les trois ventres du champ qui sont déjà présents sur la figure (c) de la figure 3.2.

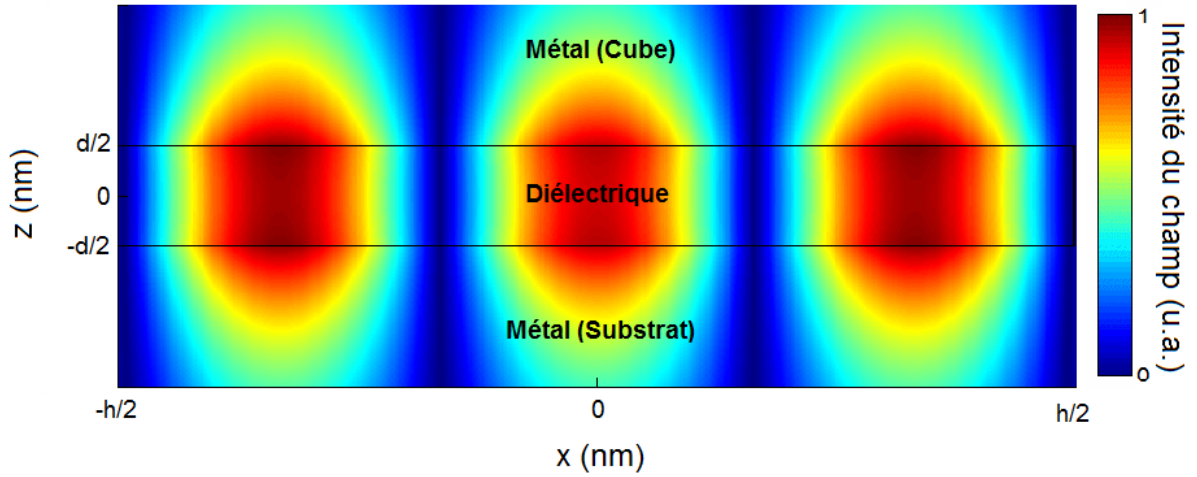


FIGURE 3.7 – Carte du champ H_y pour une résonance du second mode impair (avec 3 ventres)

3.2.2 Calcul du champ \vec{E}

Une fois le champ magnétique obtenu, il devient possible de calculer *analytiquement* le champ électrique lié à la résonance. Pour cela, nous allons reprendre les équations de Maxwell en polarisation TM présentées dans le chapitre précédent (voir équations 2.12). Ainsi, pour obtenir les champs E_x et E_z , il nous suffit de dériver H_y respectivement par rapport à z ou à x :

$$E_x = -\frac{i}{\omega \epsilon_0 \epsilon_r} \frac{\partial H_y}{\partial z} \quad (3.12)$$

$$E_z = \frac{i}{\omega \epsilon_0 \epsilon_r} \frac{\partial H_y}{\partial x} \quad (3.13)$$

Les champs E_x et E_z sont présentés ci-dessous, encore une fois respectivement dans le métal au dessus du diélectrique, dans l'interstice et au dessous du diélectrique :

$$\begin{cases} E_x = \frac{i}{\omega\epsilon_0\epsilon_r} \frac{1}{1-r^2e^{2i\alpha h}} \left[A'_l \left(e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) + A'_r \left(r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) \right] \kappa_1 A e^{-\kappa_1 z} \\ E_x = -\frac{i}{\omega\epsilon_0\epsilon_r} \frac{1}{1-r^2e^{2i\alpha h}} \left[A'_l \left(e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) + A'_r \left(r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) \right] \kappa_2 B \sinh(\kappa_2 z) \\ E_x = -\frac{i}{\omega\epsilon_0\epsilon_r} \frac{1}{1-r^2e^{2i\alpha h}} \left[A'_l \left(e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) + A'_r \left(r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} + e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) \right] \kappa_1 A e^{\kappa_1 z} \end{cases} \quad (3.14)$$

$$\begin{cases} E_z = \frac{i}{\omega\epsilon_0\epsilon_r} \frac{1}{1-r^2e^{2i\alpha h}} \left[A'_l \left(e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} - r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) + A'_r \left(r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} - e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) \right] i\alpha A e^{-\kappa_1 z} \\ E_z = \frac{i}{\omega\epsilon_0\epsilon_r} \frac{1}{1-r^2e^{2i\alpha h}} \left[A'_l \left(e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} - r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) + A'_r \left(r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} - e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) \right] i\alpha B \cosh(\kappa_2 z) \\ E_z = \frac{i}{\omega\epsilon_0\epsilon_r} \frac{1}{1-r^2e^{2i\alpha h}} \left[A'_l \left(e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} - r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) + A'_r \left(r e^{i\alpha\frac{h}{2}} e^{i\alpha x} - e^{-i\alpha\frac{h}{2}} e^{-i\alpha x} \right) \right] i\alpha A e^{\kappa_1 z} \end{cases} \quad (3.15)$$

En polarisation TM, le champ magnétique int egrale est le champ H_y . Cependant, le champ  electrique total E est s epar e en deux composantes E_x et E_z . Pour obtenir le module du champ  electrique total, il faut combiner ces deux composantes. Ainsi le champ total E est $E = \sqrt{E_x E_x^* + E_z E_z^*}$. En reprenant les formules des champs E_x et E_z avec les coefficients A_l et A_r , nous obtenons dans la partie m etallique du patch :

$$\begin{aligned} E_x E_x^* &= \frac{1}{\omega^2 \epsilon_0^2 \epsilon_r^2} \frac{|t|^2 e^{-2Im(\alpha)h}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h} - r^{*2} e^{-2i\alpha^* h} + r^2 r^{*2} e^{-4Im(\alpha)h}} |\kappa_1|^2 e^{-2Re(\kappa_1)z} \times \\ &\quad \left\{ |A_l|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} \right) \right. \\ &\quad + |A_r|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} \right) \\ &\quad + A_l A_r^* \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} \right) \\ &\quad \left. + A_l^* A_r \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} \right) \right\} \end{aligned} \quad (3.16)$$

et

$$\begin{aligned}
E_z E_z^* = & \frac{1}{\omega^2 \epsilon_0^2 \epsilon_r^2} \frac{|t|^2 e^{-2Im(\alpha)h}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h} - r^{*2} e^{-2i\alpha^* h} + r^2 r^{*2} e^{-4Im(\alpha)h}} |\alpha|^2 e^{-2Re(\kappa_1)z} \times \\
& \left\{ |A_l|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} - r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} - r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} \right) \right. \\
& + |A_r|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} - r e^{iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} - r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} \right) \\
& + A_l A_r^* \left(-e^{Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} - |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} \right) \\
& \left. + A_l^* A_r \left(-e^{Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} - |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} \right) \right\}
\end{aligned} \tag{3.17}$$

soit pour le module du champ E dans le patch :

$$\begin{aligned}
\|\vec{E}\|^2 = & \frac{1}{\omega^2 \epsilon_0^2 \epsilon_r^2} \frac{|t|^2 e^{-2Im(\alpha)h}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h} - r^{*2} e^{-2i\alpha^* h} + r^2 r^{*2} e^{-4Im(\alpha)h}} e^{-2Re(\kappa_1)z} \times \\
& \left\{ \left(|\kappa_1|^2 + |\alpha|^2 \right) \times \left[|A_l|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} \right) \right. \right. \\
& \quad + |A_r|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} \right) \\
& \quad + A_l A_r^* \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} \right) \\
& \quad \left. + A_l^* A_r \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} \right) \right] \\
& + \left(|\kappa_1|^2 - |\alpha|^2 \right) \times \left[|A_l|^2 \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} \right) \right. \\
& \quad + |A_r|^2 \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} \right) \\
& \quad + A_l A_r^* \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} \right) \\
& \quad \left. + A_l^* A_r \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} \right) \right] \left. \right\}
\end{aligned} \tag{3.18}$$

Ces formules sont valables pour le champ à l'intérieur du nanopatch. Pour la partie métallique sous la cavité, les formules seront les mêmes en changeant $e^{-\kappa_1 z}$ en $e^{\kappa_1 z}$. Pour la partie diélectrique c'est-à-dire le centre de la cavité, ces formules ne changent pas beaucoup. Elles deviennent :

$$\begin{aligned}
E_x E_x^* = & \frac{1}{\omega^2 \epsilon_0^2 \epsilon_r^2} \frac{|t|^2 e^{-2Im(\alpha)h}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h} - r^{*2} e^{-2i\alpha^* h} + r^2 r^{*2} e^{-4Im(\alpha)h}} |\kappa_2|^2 |b|^2 \frac{e^{2Re(\kappa_2)z} - e^{-2Re(\kappa_2)z}}{2} \times \\
& \left\{ |A_l|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} \right) \right. \\
& + |A_r|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} \right) \\
& + A_l A_r^* \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} \right) \\
& \left. + A_l^* A_r \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} \right) \right\}
\end{aligned} \tag{3.19}$$

$$\begin{aligned}
E_z E_z^* = & \frac{1}{\omega^2 \epsilon_0^2 \epsilon_r^2} \frac{|t|^2 e^{-2Im(\alpha)h}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h} - r^{*2} e^{-2i\alpha^* h} + r^2 r^{*2} e^{-4Im(\alpha)h}} |\alpha|^2 |b|^2 \frac{e^{2Re(\kappa_2)z} - e^{-2Re(\kappa_2)z}}{2} \times \\
& \left\{ |A_l|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} - r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} - r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} \right) \right. \\
& + |A_r|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} - r e^{iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} - r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} \right) \\
& + A_l A_r^* \left(-e^{Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} - |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} \right) \\
& \left. + A_l^* A_r \left(-e^{Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} - |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} \right) \right\} \quad (3.20)
\end{aligned}$$

soit pour le module du champ électrique dans la cavité :

$$\begin{aligned}
\|\vec{E}\|^2 = & \frac{1}{\omega^2 \epsilon_0^2 \epsilon_r^2} \frac{|t|^2 e^{-2Im(\alpha)h}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h} - r^{*2} e^{-2i\alpha^* h} + r^2 r^{*2} e^{-4Im(\alpha)h}} |b|^2 \frac{e^{2Re(\kappa_2)z} - e^{-2Re(\kappa_2)z}}{2} \times \\
& \left\{ (|\kappa_2|^2 + |\alpha|^2) \times \left[|A_l|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} \right) \right. \right. \\
& \quad + |A_r|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} \right) \\
& \quad + A_l A_r^* \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} \right) \\
& \quad \left. \left. + A_l^* A_r \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} \right) \right] \right. \\
& + (|\kappa_2|^2 - |\alpha|^2) \times \left[|A_l|^2 \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} \right) \right. \\
& \quad + |A_r|^2 \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} \right) \\
& \quad + A_l A_r^* \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} \right) \\
& \quad \left. \left. + A_l^* A_r \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} \right) \right] \right\} \quad (3.21)
\end{aligned}$$

Il devient alors possible d'obtenir une carte du champ à partir de ces expressions analytiques, et le résultat est montré figure 3.8.

3.2.3 Pertes associées à la résonance

La dernière partie de mes calculs concerne les pertes dans la structure. Ces pertes sont importantes car ce sont elles qui se manifestent lorsque la réflectivité de la structure chute. Ce sont elles qui vont nous permettre de mettre clairement en équation le contrôle interférentiel de l'absorption par la structure.

De façon très générale, les pertes volumiques sont données par l'expression

$$P(x, z) = -\Re(\vec{j}) \cdot \Re(\vec{E}) \quad (3.22)$$

où \vec{j} représente aussi les courant microscopiques. En l'occurrence, dans un métal considéré comme un diélectrique, ces courants sont vus comme des courants de déplacement même s'ils correspondent à des courants bien réels. Ils s'écrivent donc $\vec{j} = \frac{\partial \vec{P}}{\partial t}$, et $\vec{P} = \epsilon_0 \vec{D} \cdot \vec{E}$.

De ce fait, $\vec{j} = (\epsilon_0 \epsilon_r - \epsilon_0) \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = -i\omega(\epsilon_0 \epsilon_r - \epsilon_0) \vec{E}$.

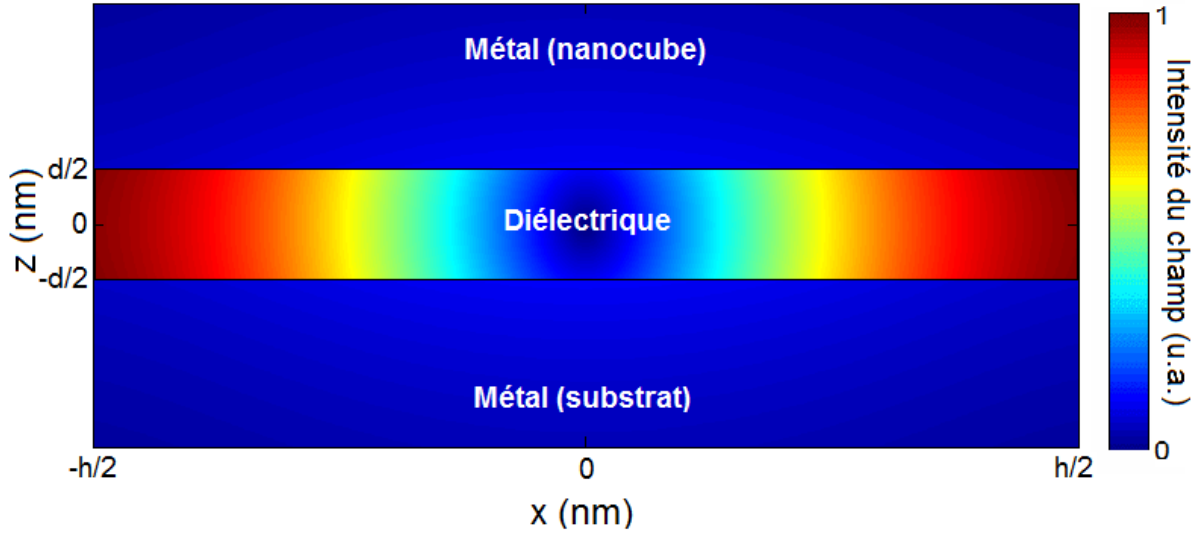


FIGURE 3.8 – Carte du module du champ électrique lors d'une résonance fondamentale.

D'autre part,

$$\begin{aligned}
 P(x, z) &= -\Re(\vec{j}) \cdot \Re(\vec{E}) = \frac{1}{4} (\vec{j} + \vec{j}^*) \cdot (\vec{E} + \vec{E}^*) \\
 &= \frac{1}{4} \langle \vec{j} \cdot \vec{E} + \vec{j}^* \cdot \vec{E}^* + \vec{j} \cdot \vec{E}^* + \vec{j}^* \cdot \vec{E} \rangle \quad (3.23) \\
 &= \frac{1}{2} \text{Re}(\vec{j} \cdot \vec{E}^*)
 \end{aligned}$$

Finalement

$$P(x, z) = -\Re(\vec{j}) \cdot \Re(\vec{E}) = \frac{1}{2} \omega \epsilon_0 \Im(\epsilon_r) \|\vec{E}\|^2 \quad (3.24)$$

Les pertes se font exclusivement dans les parties métalliques, tant qu'on néglige l'absorption par le diélectrique (voir figure 3.9). En reprenant les équations du champ \vec{E} , nous pouvons calculer les pertes totales. Nous exposerons ici les calculs pour la partie métallique au dessus de la cavité (nanopatch) mais ils ont la même forme pour la partie au dessous de la cavité

(substrat) exception faite de $e^{-i\kappa_1 z}$ qui se transforme en $e^{i\kappa_1 z}$. Ainsi elles s'écrivent :

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} Re \left\{ \frac{-i(\epsilon_0 \epsilon_r - \epsilon_0)}{\omega \epsilon_0^2 \epsilon_r^2} \frac{|t|^2 e^{-2Im(\alpha)h}}{1 - r^2 e^{2i\alpha h} - r^{*2} e^{-2i\alpha^* h} + r^2 r^{*2} e^{-4Im(\alpha)h}} |A|^2 e^{-2Re(\kappa_1)z} \times \right. \\ \left. \left\{ (|\kappa_1|^2 + |\alpha|^2) \times \left[|A_l|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} \right) \right. \right. \right. \\ \left. \left. \left. + |A_r|^2 \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} \right) \right. \right. \right. \\ \left. \left. \left. + A_l A_r^* \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} \right) \right. \right. \right. \\ \left. \left. \left. + A_l^* A_r \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2Im(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2Im(\alpha)x} \right) \right] \right. \right. \\ \left. \left. + (|\kappa_1|^2 - |\alpha|^2) \times \left[|A_l|^2 \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} \right) \right. \right. \right. \\ \left. \left. \left. + |A_r|^2 \left(r e^{iRe(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + r^* e^{-iRe(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} \right) \right. \right. \right. \\ \left. \left. \left. + A_l A_r^* \left(e^{Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} \right) \right. \right. \right. \\ \left. \left. \left. + A_l^* A_r \left(e^{Im(\alpha)h} e^{-2iRe(\alpha)x} + |r|^2 e^{-Im(\alpha)h} e^{2iRe(\alpha)x} \right) \right] \right] \right\} \end{aligned} \quad (3.25)$$

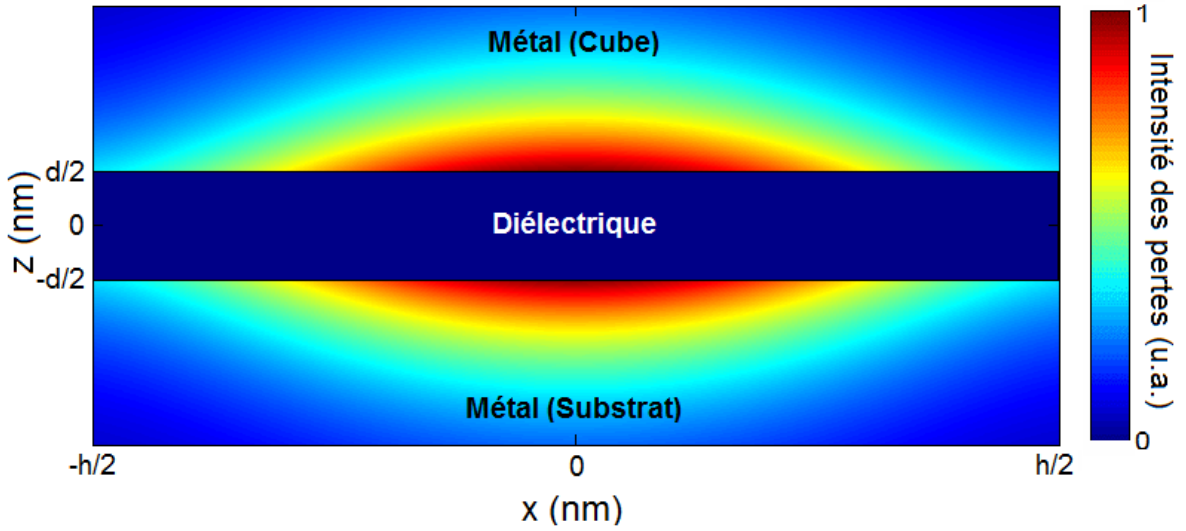


FIGURE 3.9 – Répartition des pertes dans la structure lors d'une résonance fondamentale.

Nous savons que la partie imaginaire du coefficient de propagation α est très petite par rapport à sa partie réelle. A titre d'exemple, pour un interstice de 10 nm, l'indice effectif α/k_0 du gap-plasmon vaut $2,7239 + 0,0741i$. Ainsi, nous pouvons considérer α comme étant purement réel pour les besoins du calcul sans faire une approximation trop importante. L'équation précédente devient ainsi :

$$\begin{aligned}
P(x, z) = & \frac{1}{2} \operatorname{Re} \left\{ \frac{-i(\epsilon_0 \epsilon_r - \epsilon_0)}{\omega \epsilon_0^2 \epsilon_r^2} \frac{|t|^2}{1 - r^2 e^{2i\alpha h} - r^{*2} e^{-2i\alpha h} + r^2 r^{*2}} |A|^2 e^{-2\operatorname{Re}(\kappa_1)z} \times (|\kappa_1|^2 + \alpha^2) \times \right. \\
& \left\{ \left[|A_l|^2 (1 + |r|^2) + |A_r|^2 (1 + |r|^2) + A_l A_r^* (r e^{i\alpha h} + r^* e^{-i\alpha h}) + A_l^* A_r (r e^{i\alpha h} + r^* e^{-i\alpha h}) \right] \right. \\
& + \left[|A_l|^2 (r e^{i\alpha h} e^{-2i\alpha x} + r^* e^{-i\alpha h} e^{2i\alpha x}) + |A_r|^2 (r e^{i\alpha h} e^{2i\alpha x} + r^* e^{-i\alpha h} e^{-2i\alpha x}) \right. \\
& \left. \left. + A_l A_r^* (e^{2i\alpha x} + |r|^2 e^{-2i\alpha x}) + A_l^* A_r (e^{-2i\alpha x} + |r|^2 e^{2i\alpha x}) \right] \right\} \left. \right\}
\end{aligned} \tag{3.26}$$

Pour obtenir une formule pour les pertes totales notées L , il nous reste encore à intégrer sur l'espace métallique total soit :

$$L = \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} \int_{\frac{d}{2}}^{\infty} P dz dx + \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} \int_{-\infty}^{-\frac{d}{2}} P(x, z) dz dx \tag{3.27}$$

Encore une fois, nous présenterons le calcul de l'intégration pour la partie métallique au dessus de la cavité soit dans le cube sachant que celle sous la cavité a la même forme.

$$\begin{aligned}
& \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} \int_{\frac{d}{2}}^{\infty} P dz dx = \\
& -\frac{1}{2} \operatorname{Re} \left\{ \frac{-i(\epsilon_0 \epsilon_r - \epsilon_0)}{\omega \epsilon_0^2 \epsilon_r^2} \frac{|t|^2}{1 - r^2 e^{2i\alpha h} - r^{*2} e^{-2i\alpha h} + r^2 r^{*2}} |A|^2 e^{-\operatorname{Re}(\kappa_1)d} \times \right. \\
& \left\{ |A_l|^2 \left[(|\kappa_1|^2 + \alpha^2) (h + |r|^2 h) + \frac{|\kappa_1|^2 - \alpha^2}{2i\alpha} (r^* - r + r e^{2i\alpha h} - r^* e^{-2i\alpha h}) \right] \right. \\
& |A_r|^2 \left[(|\kappa_1|^2 + \alpha^2) (h + |r|^2 h) + \frac{|\kappa_1|^2 - \alpha^2}{2i\alpha} (r^* - r + r e^{2i\alpha h} - r^* e^{-2i\alpha h}) \right] \\
& A_l A_r^* \left[(|\kappa_1|^2 + \alpha^2) (h r e^{i\alpha h} + h r^* e^{-i\alpha h}) + \frac{|\kappa_1|^2 - \alpha^2}{2i\alpha} (e^{i\alpha h} - e^{-i\alpha h} + |r|^2 e^{i\alpha h} - |r|^2 e^{-i\alpha h}) \right] \\
& \left. \left. A_l^* A_r \left[(|\kappa_1|^2 + \alpha^2) (h r e^{i\alpha h} + h r^* e^{-i\alpha h}) + \frac{|\kappa_1|^2 - \alpha^2}{2i\alpha} (e^{i\alpha h} - e^{-i\alpha h} + |r|^2 e^{i\alpha h} - |r|^2 e^{-i\alpha h}) \right] \right] \right\} \left. \right\}
\end{aligned} \tag{3.28}$$

3.2.4 Contrôle interférométrique à la résonance

Les pertes dans le métal sont les plus élevées lorsque le champ électromagnétique entre dans la cavité c'est-à-dire pour les longueurs d'onde proche des résonances. Dans ces conditions, le terme $\frac{1}{1 - r^2 e^{2i\alpha h} - r^{*2} e^{-2i\alpha h}}$ connaît un maximum. Cette condition de résonance peut aussi s'écrire $1 - r^2 e^{2i\alpha h} \approx 0$, ce qui revient à dire qu'à la résonance on a $r = \pm e^{-i\alpha h}$. C'est ici qu'il faut faire une distinction très nette entre les résonances possédant un nombre pair de ventres, pour lesquelles $r = -e^{-i\alpha h}$, et les résonances présentant un nombre impair de ventres pour lesquelles

$r = e^{-i\alpha h}$. Si maintenant on fait l'approximation que le module du coefficient de réflexion est très proche de 1, on obtient une expression simplifiée pour les pertes. Elle n'est valable que très près de la résonance, mais elle permet de formaliser parfaitement l'analyse physique ayant mené à cette étude. A l'inverse, les expressions complètes peuvent être utilisées pour reproduire fidèlement les champs liés à la résonance.

$$\begin{aligned}
\int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} \int_{\frac{d}{2}}^{\infty} P dz dx &= -Re \left\{ \frac{-i(\epsilon_0 \epsilon_r - \epsilon_0)}{\omega \epsilon_0^2 \epsilon_r^2} \frac{|t|^2}{1 - r^2 e^{2i\alpha h} - r^{*2} e^{-2i\alpha h} + r^2 r^{*2}} |A|^2 e^{-Re(\kappa_1)d} \times \right. \\
&\left. \left\{ |A_l|^2 \left[(|\kappa_1|^2 + \alpha^2) h + \frac{|\kappa_1|^2 - \alpha^2}{2i\alpha} (e^{i\alpha h} - e^{-i\alpha h}) \right] \right. \right. \\
&+ |A_r|^2 \left[(|\kappa_1|^2 + \alpha^2) h + \frac{|\kappa_1|^2 - \alpha^2}{2i\alpha} (e^{i\alpha h} - e^{-i\alpha h}) \right] \\
&\left. \left. \pm (A_l A_r^* + A_l^* A_r) \left[(|\kappa_1|^2 + \alpha^2) h + \frac{|\kappa_1|^2 - \alpha^2}{2i\alpha} (e^{i\alpha h} - e^{-i\alpha h}) \right] \right\} \right\}
\end{aligned} \tag{3.29}$$

Finalement, nous pouvons mettre les pertes dans la structure sous la forme suivante, montrant bien les interférences :

$$L = \beta |A_l|^2 + \beta |A_r|^2 \pm \beta (A_l A_r^* + A_l^* A_r) = \beta (|A_l|^2 + |A_r|^2 \pm 2\Re(A_l A_r^*)) \tag{3.30}$$

On constate bien qu'en incidence normale, pour laquelle A_l et A_r sont forcément égales et en phase, alors soit la résonance possède un nombre pair de ventres et on a un signe $-$ dans l'expression précédente, ce qui mène à $L = 0$, soit la résonance possède un nombre impair de ventres et on a un signe $+$ menant à $L = 4\beta |A_l|^2$ soit une absorption quatre fois supérieure à ce qui se produit quand seulement un des deux côtés est excité. C'est sans doute ce point qui explique la supériorité des antennes patch, en terme de section efficace d'absorption, par rapport aux fentes. Les fentes sont excitées d'une façon assez similaire, puisque l'entrée de la cavité se trouve au maximum du champ magnétique imposé par la réflexion. Mais les fentes ne sont pas excitées des deux côtés.

On peut maintenant explorer la dépendance en angle de l'excitation des résonances. On fait l'hypothèse qu'aux petits angles, le module de l'excitation ne change pas. C'est forcément partiellement vrai, car on peut estimer que le patch fait de l'ombre dans ce cas à une des deux entrées de la cavité. Cela dit, étant donné la très petite taille du patch par rapport à la longueur d'onde, cette hypothèse n'est pas très restrictive. D'autre part, quand on regarde quel facteur influe le plus sur le contrôle interférométrique et les pertes L , on s'aperçoit que ce qui domine c'est le déphasage entre les deux coefficients, bien plus qu'une différence de module.

On fait l'hypothèse que ce déphasage est simplement donné par

$$\Delta\Phi = \frac{2\pi}{\lambda} h \sin \theta \tag{3.31}$$

en supposant simplement que ce déphasage est lié à une différence de marche entre une entrée et l'autre de la cavité de longueur h . Cette expression va nous permettre de comprendre mieux comment l'angle d'incidence influe sur le contrôle interférométrique et donc sur l'absorption.

Pour une résonance présentant un nombre pair de ventres, on obtient une dépendance des pertes vis à vis de l'angle de

$$L \simeq \beta \sin^2\left(\frac{\pi h}{\lambda_0} \sin(\theta)\right) \quad (3.32)$$

alors que pour une résonance présentant un nombre impair de modes on obtient

$$L \simeq \beta \sin^2\left(\frac{\pi h}{\lambda_0} \cos(\theta)\right). \quad (3.33)$$

Dans la suite, nous verrons que cette approche permet au modèle de reproduire efficacement ce qui se passe quand on change l'angle d'incidence.

3.3 Simulations

À présent qu'un modèle a été mis en place, nous allons le confronter à des simulations de la structure faites grâce aux codes modaux présentés dans le chapitre 2. Le problème d'une antenne patch telle qu'elle se présente peut être décomposé en plusieurs couches. Chaque couche est un problème modal à résoudre, et il s'agit ensuite, en utilisant les conditions aux limites, de raccorder ces différentes régions de l'espace. En utilisant les matrices S , on peut avoir accès au coefficient de réflexion dans le cas où la simulation est périodique. Et on peut alors recomposer le champ magnétique qui correspond à une longueur d'onde et à un angle d'incidence donnée. De ce champ, il est possible de déduire les autres en utilisant les équations 2.12 qui donnent les composantes du champ électrique.

Nous allons pouvoir comparer les simulations effectuées au moyen des codes modaux au modèle décrit dans ce chapitre. Pour cela, nous allons aussi engendrer des spectres et des cartes de champ pour le modèle avec une taille de cavité identique à celle des cubes de la structure et avec des matériaux identiques. Pour ce faire, nous avons créé un programme utilisant les formules des champs que nous avons présentées précédemment. Ces formules dépendent de la taille et des matériaux de la structure mais aussi du coefficient de réflexion r au bord de la cavité et du coefficient de propagation α du gap-plasmon dans la cavité de Fabry-Pérot. Il faut donc fournir au modèle ces valeurs ainsi que celle des amplitudes et phases des champs incidents de chaque côté de la cavité compris dans les variables A_l et A_r . Les amplitudes sont arbitrairement choisies étant égales à 1 parce que le modèle, comme expliqué ci-dessus, ne fournit qu'une variation relative de l'absorption. Par contre, le déphasage entre les deux coefficients correspond toujours à la différence de chemin optique parcourue par l'onde plane incidente soit une différence de marche $\delta = h \times \sin(\theta)$ avec h la taille du cube et θ l'angle d'incidence de l'onde plane. Ainsi, si $A_l = 1$ alors $A_r = e^{i\pi(\frac{2\pi}{\lambda}\delta)}$. Il nous reste encore à trouver le coefficient de propagation α et le coefficient de réflexion r . Pour les obtenir, nous allons utiliser les codes modaux une nouvelle fois pour les calculer directement.

Pour calculer ce coefficient de réflexion, il faut trouver la matrice de diffusion d'une structure formée de deux couches (voir figure 3.10) : la première avec une partie métallique large représentant le substrat suivie d'une fine partie diélectrique pour simuler la cavité et enfin une autre partie métallique de la taille du cube pour modéliser ce dernier ; la seconde composée des deux mêmes parties mais avec de l'air pour la troisième partie. Cette structure représente verticalement la cavité cernée des deux métaux et l'interface au bord de cette cavité.

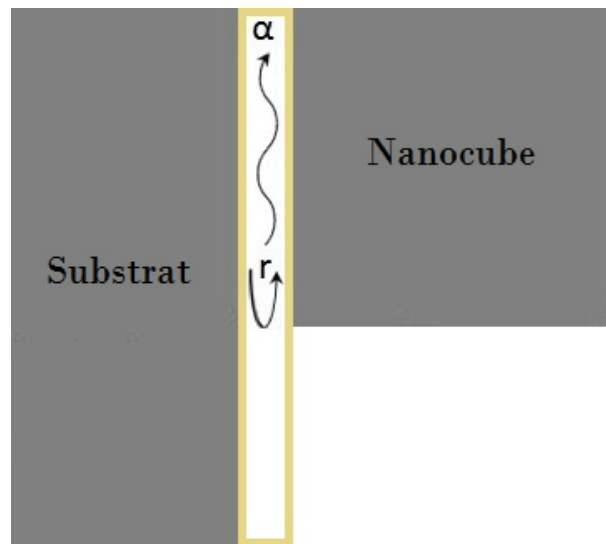


FIGURE 3.10 – Schématisation de la structure utilisée pour trouver les coefficients α et r du modèle.

La méthode modale fournit naturellement la constante de propagation de tous les modes se propageant dans la structure. Du côté du gap-plasmon, on isole celui qui possède la plus petite partie imaginaire pour sa constante de propagation. C'est le seul mode qui se propage, c'est le gap-plasmon lui-même. Sa constante de propagation est donc la quantité α recherchée. Une fois ce mode isolé, on cherche dans la matrice de diffusion le coefficient de réflexion de ce mode. Étant donné la façon dont elle est construite, si le gap-plasmon est le i ème mode, alors il faut prendre la valeur située à la ligne i et à la colonne i . Une fois tous les paramètres trouvés, les programmes utilisant les formules des champs de la cavité Fabry-Pérot peuvent fournir au choix, des spectres d'absorption ou des cartes de champs.

La méthode est efficace, et elle permet notamment grâce à la technique stretching, de retrouver le coefficient de réflexion pour des interstices aussi petits qu'un nanomètre. Cela représente pourtant d'un point de vue numérique un problème extrêmement difficile étant donné la différence d'échelle entre cet interstice et le domaine de simulation de l'ordre de 500 fois plus large. Mais la connaissance de ce coefficient de réflexion permet aussi de mieux comprendre pourquoi notamment les résonance à gap-plasmon ne se manifestent de façon détectable qu'à relativement faible épaisseur. Le coefficient de réflexion est en effet beaucoup plus faible pour un interstice de quelques dizaines de nanomètres que pour un ou deux nanomètres (voir figure 3.11). Cela permet aussi de mieux comprendre pourquoi à très faible épaisseur il devient de plus en plus difficile pour la résonance de produire une lumière diffusée : le coefficient de réflexion devient trop élevé.

3.3.1 Cartes de champ

Dans la partie qui suit, nous comparons les cartes de champs obtenues grâce au modèle à celles créées au moyen des codes modaux. Pour les images présentées ici, nous avons cartographié la répartition des modules des champs dans la structure avec une épaisseur de diélectrique de 7 nm. Donc pour le modèle, la cavité possède une hauteur d égale à 7 nm. Le nanocube utilisé mesure 62 nm et la longueur d'onde λ choisie vaut 800 nm. Si on regarde le coefficient de réflexion de la structure avec les nanocubes dans ces conditions, on peut voir qu'il est proche de zéro. La structure est donc en pleine résonance. Il faut être conscient que les cartes faites avec les

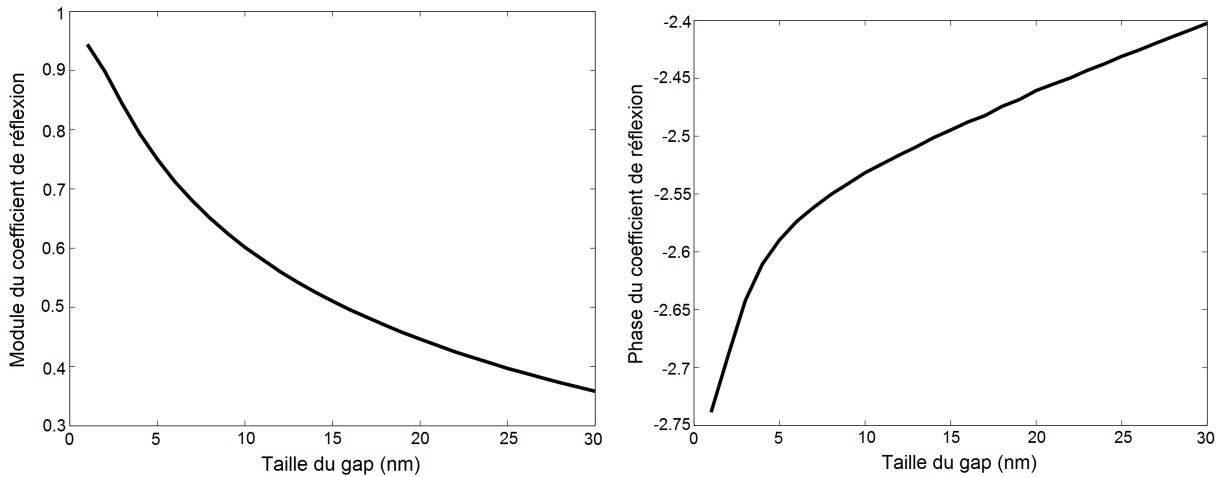


FIGURE 3.11 – Module et phase du coefficient de réflexion r en fonction de la taille du gap en nanomètres.

codes modaux et celles provenant du modèle ne représentent pas exactement le même espace : le modèle prend en compte la cavité formée du film diélectrique et les parties métalliques au dessus et au dessous mais pas ce qu'il y a au dessus et sur les côtés du nanocube alors que les cartes de champ provenant des codes modaux montrent toute la structure c'est-à-dire le substrat, le film diélectrique, le nanocube et l'air au dessus et sur les côtés du cube. Ainsi les cartes créées à l'aide du modèle peuvent être vues comme un zoom par rapport à celles des codes modaux.

En comparant les deux cartes du champ H_y (voir figure 3.12), nous pouvons remarquer que le champ a exactement la même forme. Pour chacune des cartes, les programmes calculent le champ pour chacun des points de la carte. Ainsi, en définissant un nombre de pixels, nous pouvons au choix augmenter la résolution avec plus de temps de calcul ou diminuer la résolution mais gagner du temps. Les cartes montrent la structure en résonance fondamentale. On peut ainsi voir un champ constitué d'un ventre complet et unique ce qui caractérise la résonance principale.

Lorsque l'on s'intéresse aux cartes des champs E_x , E_z et E (voir figures 3.13 et 3.14), on remarque que les champs sont légèrement différents. En fait, on peut voir que les champs des parties illustrées sur les cartes provenant des codes créés à partir du modèle ont la même forme dans les cartes faites à partir des codes modaux. Cependant, sur ces dernières un champ très intense apparaît près des coins inférieurs du nanocube. Cela vient du fait que dans ces codes, les nanocubes sont modélisés par des cubes parfaits c'est-à-dire avec des angles pointus. D'un point de vue électromagnétique, cela correspond à une singularité. Celle-ci n'apparaît que pour le champ électrique. Dans la réalité, les nanocubes ne sont pas des cubes idéaux mais possèdent des sommets arrondis. La courbure des sommets doit diminuer le phénomène de capture du champ électrique le champ aux coins bas du cube devrait toujours exister mais être moins intense que sur les simulations.

Avec ces cartes de champ, on peut remarquer qu'à la résonance, le champ magnétique est concentré au centre sous le cube alors que le champ électrique se concentre lui sous le cube mais sur les bords. En effet, le champ électrique se place aux bordures du cube voire même dépasse un peu de sous le nanocube. Cette caractéristique pourrait en faire un bon choix pour

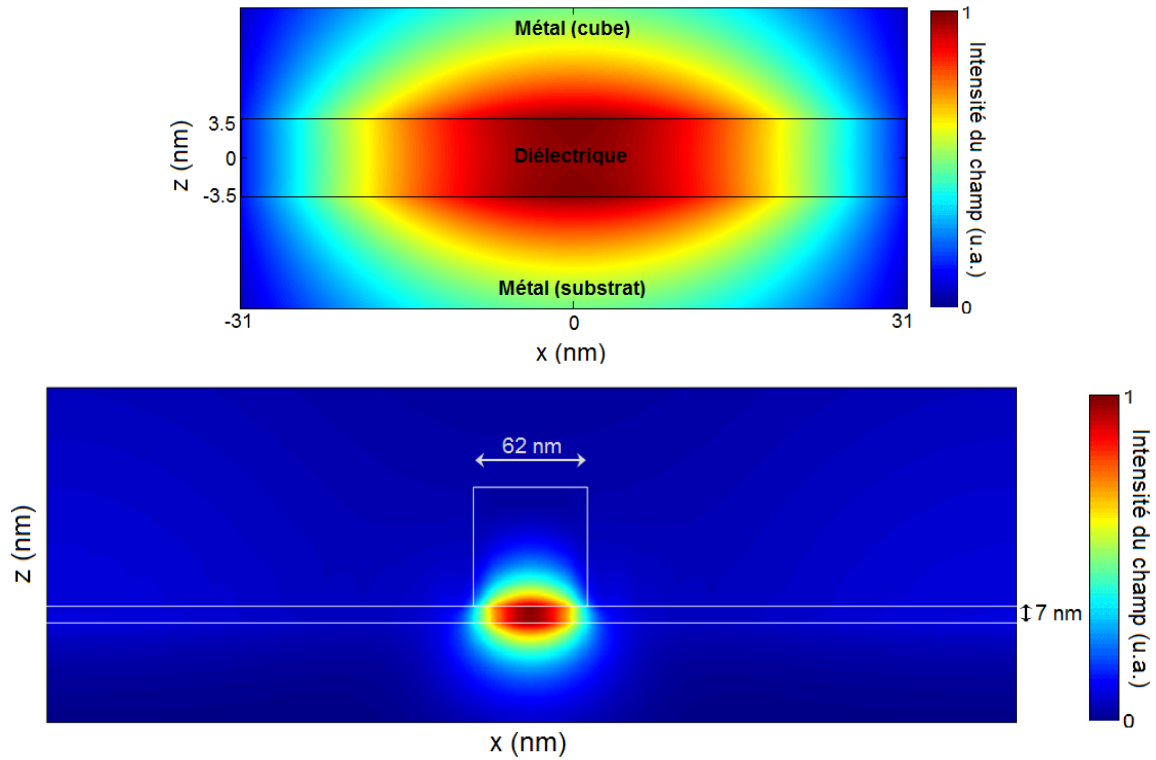


FIGURE 3.12 – Carte du champ H_y tirée du modèle (en haut) et tirée de la simulation directe avec les codes modaux (en bas).

des applications en biosensing ou pour l'effet Raman, qui est proportionnel à $|\vec{E}|^4$. Assurément, le champ électrique est très intense aux bords inférieurs du nanocube. De ce fait, les molécules biologiques pourraient interagir aisément avec ce champ. De plus, l'interaction avec quelques unes de ces molécules modifierait la position de la résonance notamment par une modification de la phase du coefficient de réflexion r .

Concernant les pertes qui se font dans le métal par effet Joule, nous pouvons voir sur la figure 3.15 que les pertes des simulations ont bien la même forme que celles prévues par le modèle. Cependant, nous pouvons encore voir que même si ça n'est pas aussi intense que ce que pourraient laisser supposer la carte du champ électrique, les sommets du cube perturbent à nouveau les choses. Ces sommets concentrent le champ électrique et ainsi les pertes deviennent plus importantes sur les bords inférieurs du cube qu'on pourrait s'y attendre. Ces pertes supplémentaires ne modifient cependant pas énormément la carte globale.

3.3.2 Spectres d'absorption et de réflexion

Ces cartes de champ montrent que le modèle peut bien s'appliquer aux nanocubes. Cependant, nous allons aussi vérifier que le modèle corresponde aux simulations des codes modaux au moyen de spectre de réflexion ou d'absorption selon la taille des nanocubes ou la longueur d'onde incidente. De plus, nous allons surveiller que le contrôle interférométrique des résonances selon l'angle fonctionne de la même façon dans les simulations que selon le modèle mis en place.

Les courbes de la figure 3.16 représentent des spectres d'absorption en haut et des spectres de réflexion en bas. Les courbes du haut ont été faites grâce au modèle alors que celle du bas proviennent des simulations directes. Les deux courbes de gauche présentent des spectres

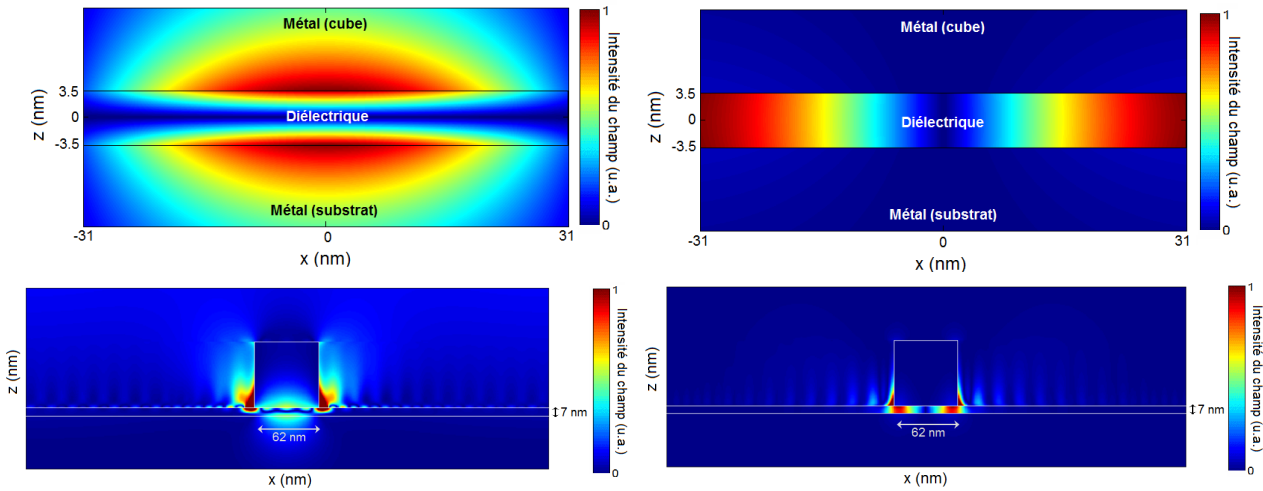


FIGURE 3.13 – Cartes des champs E_x à gauche et E_z à droite tirées du modèle en haut et créées avec les codes modaux en bas

faits en fonction de la taille du nanocube. La longueur d'onde de l'onde incidente est de 750 nm et l'onde plane arrive avec un angle nul sur la structure. Le film diélectrique possède une épaisseur de 12 nm. Les courbes de droites, elles, montrent des spectres effectués en fonction de la longueur d'onde de l'onde d'éclairage. Le nanocube a une taille de 85 nm et le diélectrique mesure 5 nm d'épaisseur. L'angle d'incidence est, cette fois encore, nul. Puisque le substrat est une plaque de métal assez large, il n'y a aucune transmission. C'est pourquoi l'absorption et la réflectivité doivent être complémentaires. Si on met en regard les courbes du haut avec celles du bas correspondantes, nous observons qu'elles sont effectivement complémentaires : les pics de résonances apparaissent aux mêmes longueurs d'onde ou pour les mêmes tailles de nanocube. De plus, leurs largeurs aussi sont semblables et la hauteur relative des pics les uns par rapport aux autres correspond également. C'est la preuve que les capacités prédictives du modèle sont très bonnes, même s'il n'est pas capable de prédire l'intensité absolue d'une résonance, il permet de comparer deux résonances entre elles.

Sur les courbes nous voyons apparaître deux pics. Or l'angle d'incidence de l'onde plane est nul. Ainsi les résonances proviennent toutes de résonances impaires - donc ayant un champ magnétique comportant un nombre de ventres complets impair. Sur les courbes de gauche, le premier pic est le mode fondamental parce que cela correspond aux plus petites tailles de patch, et le second est le troisième harmonique. Cependant, sur les courbes de droite, les pics sont placés dans le sens inverse parce que le mode fondamental correspond à une longueur d'onde effective du gap-plasmon plus grande, de l'ordre du double de la taille du cube. C'est pour des longueurs d'ondes plus grandes que l'on trouve donc la résonance fondamentale.

Pour finir, nous montrerons des spectres en fonction de la longueur du patch à différents angles d'incidence (voir figure 3.17). La structure utilisée pour créer ces spectres est formée d'un film diélectrique d'épaisseur 10 nm éclairée d'une longueur d'onde à 950 nm. L'angle d'incidence de l'onde plane varie de 0° à 30° . Concernant le modèle, cette différence d'angle d'incidence correspond à un déphasage entre les excitations à gauche et à droite que nous modéliserons comme la différence de chemin optique de l'onde plane pour atteindre chacun des sommets au bas du nanopatch. En effet, la lumière contourne le cube pour aller exciter la cavité sous le cube de chaque côté. On peut remarquer sur les courbes que l'intensité des résonances excitées par les modes impairs comme celle de droite diminue avec l'angle alors que celle des

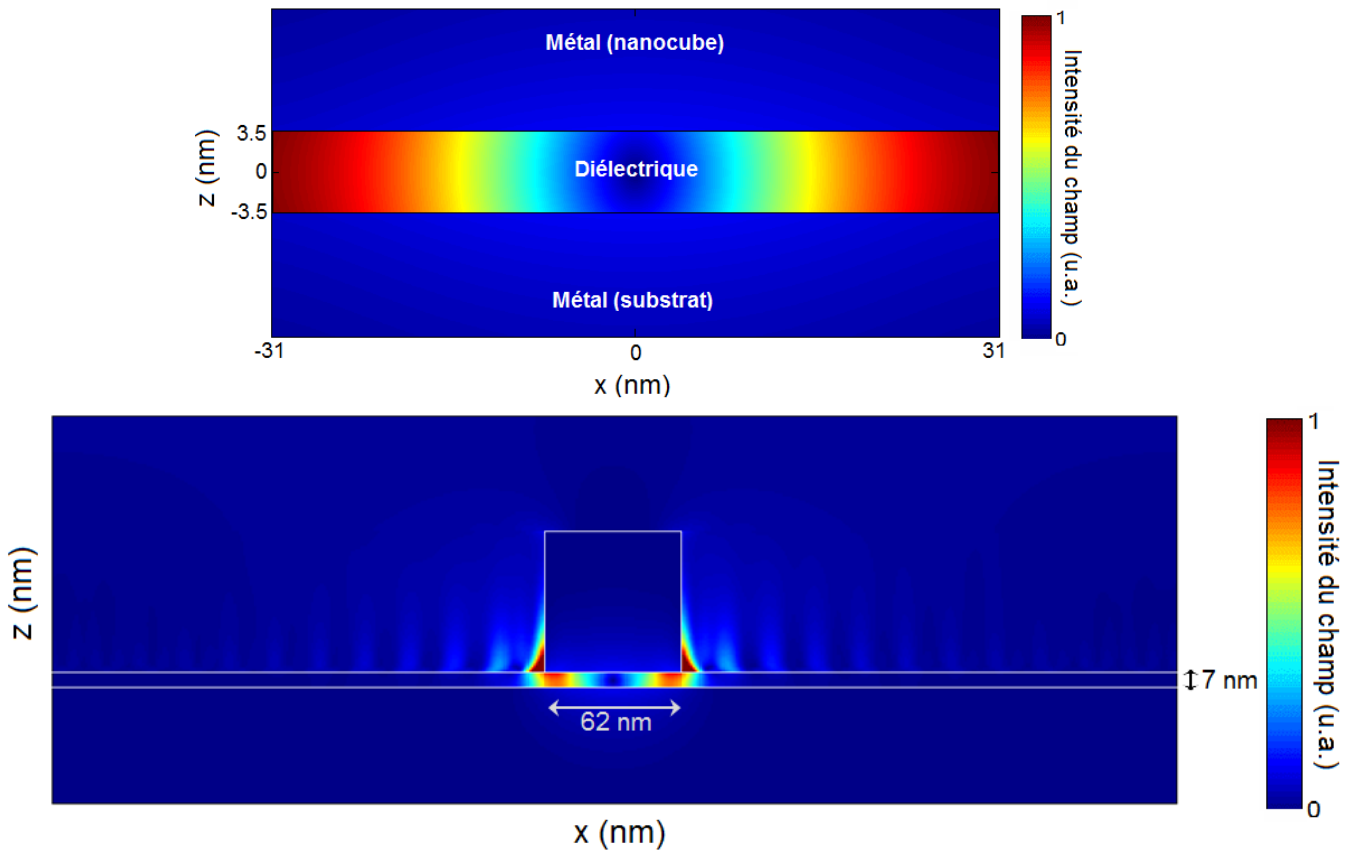


FIGURE 3.14 – Carte du champ E total tirée du modèle en haut et créée avec les codes modaux en bas

résonances excitées par les modes pairs augmente avec l'angle. En effet, avec le déphasage engendré par la différence de chemin optique, les ventres des modes impairs se déphasent et les interférences deviennent de moins en moins constructives. Par opposition à ces modes, le déphasage entraîne un décalage de ventres qui ne s'annulent plus tout à fait et les interférences ne sont plus totalement destructives.

Nous pouvons remarquer sur ces courbes que le modèle prédit correctement l'emplacement des résonances ainsi que leur comportement. Cependant, il existe quelques différences entre l'intensité du champ dans le modèle et le coefficient de réflexion des simulations. La première concerne la résonance fondamentale. Celle-ci sature dans les simulations numériques. Ainsi, elle ne diminue pas avec l'angle et reste maximale pour tout angle d'incidence. Dans ces simulations, la section efficace des nanocubes est telle que ces derniers sont capables d'absorber toute la lumière incidente quel que soit l'angle d'incidence. Le modèle, quant à lui, ne prend pas en compte l'efficacité des patchs qui ne peuvent donc pas saturer. L'autre différence vient de la modification relative des résonances selon l'angle. En effet, on peut remarquer que dans les simulations numériques, les résonances varient plus rapidement que dans le cas du modèle. Ainsi pour un même angle d'incidence, la taille d'un pic de résonance paire par rapport à une résonance impaire sera plus grande dans les simulations que pour le modèle. Cela provient du fait que nous considérons pour simuler le déphasage que la lumière se propage en ligne droite. Cependant, l'onde lumineuse incidente ne traverse pas le patch mais doit plutôt contourner le métal. Ainsi le déphasage réel est légèrement plus grand. Il faudrait évaluer la distance parcourue en plus par la lumière et ajouter un terme correctif au déphasage pour améliorer le modèle.

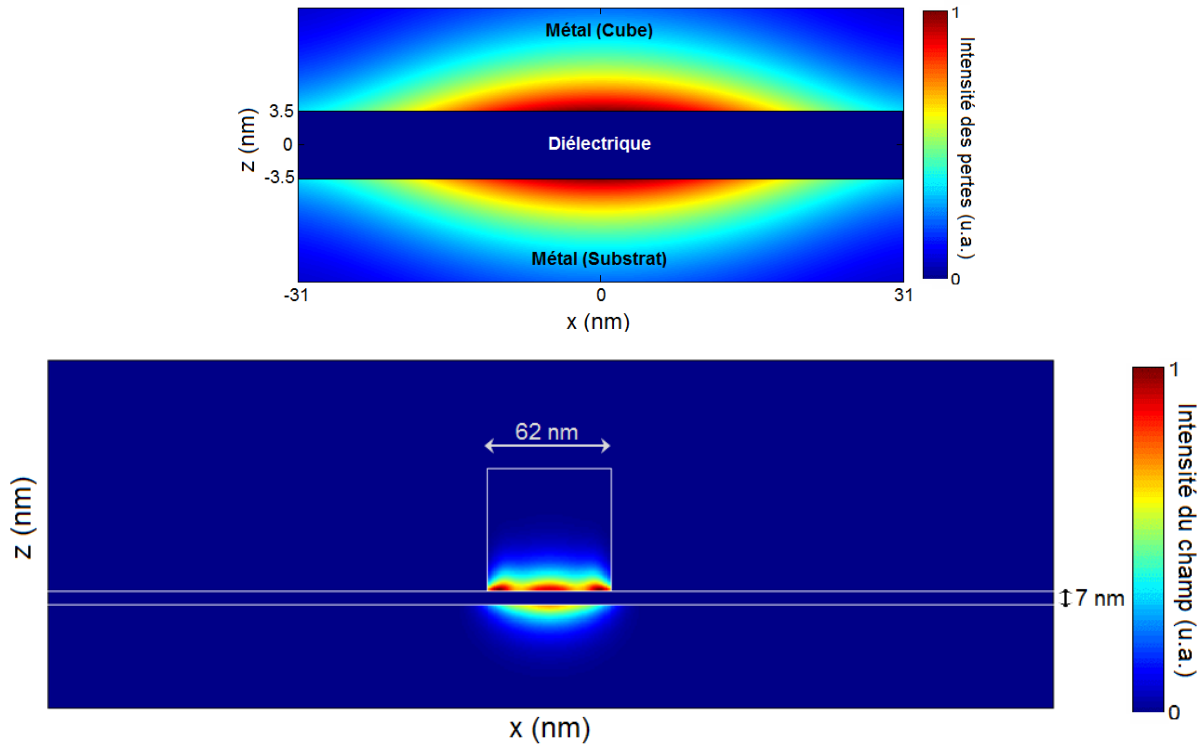


FIGURE 3.15 – Carte des pertes tirée du modèle au dessus et créée avec les codes modaux en dessous.

En conclusion, nous avons montré de façon solide que l'image d'une cavité excitée des deux côtés pour les patches était physiquement exacte, et suffisamment prédictive pour prévoir comment les résonances étaient susceptibles d'être plus ou moins excitées suivant l'angle d'incidence. Nous l'avons montré à la fois analytiquement et en comparant le modèle à des simulations directes. Le modèle que nous avons mis en place permet ainsi de prédire l'allure des champs magnétiques et électriques liés à la résonance. Certains ingrédients manquent encore, notamment comment estimer à quel point l'amplitude du champ magnétique en entrée de la cavité se transfère à la résonance quand on fait varier l'épaisseur du gap. C'est sans doute difficile ici avec nos méthodes dans la mesure où à l'extérieur de la cavité il n'y a pas qu'un seul mode. L'estimation de la différence de phase entre les deux excitations hors incidence normale est sans doute aussi à revoir aux angles un peu importants.

Au final, notre modèle montre effectivement que les résonances avec un nombre impair de ventres sont excitées de façon particulièrement efficace en incidence normale à cause d'un phénomène de renforcement interférentiel de l'absorption. Quand on augmente l'angle avec lequel on illumine une assemblée de résonateurs, il faut s'attendre à ce qu'ils deviennent moins efficaces (jusqu'à 4 fois au moins). On se met en effet à les exciter de façon déphasée de part et d'autre et cela diminue l'efficacité des interférences constructives. Sur une assemblée réaliste de résonateurs très dense, cela se manifeste pour des angles d'incidence qui peuvent être un peu plus élevés que ne le prédit l'observation d'un résonateur seul : c'est quand la section efficace d'absorption individuelle atteint la surface occupée par chaque résonateur que l'absorption to-

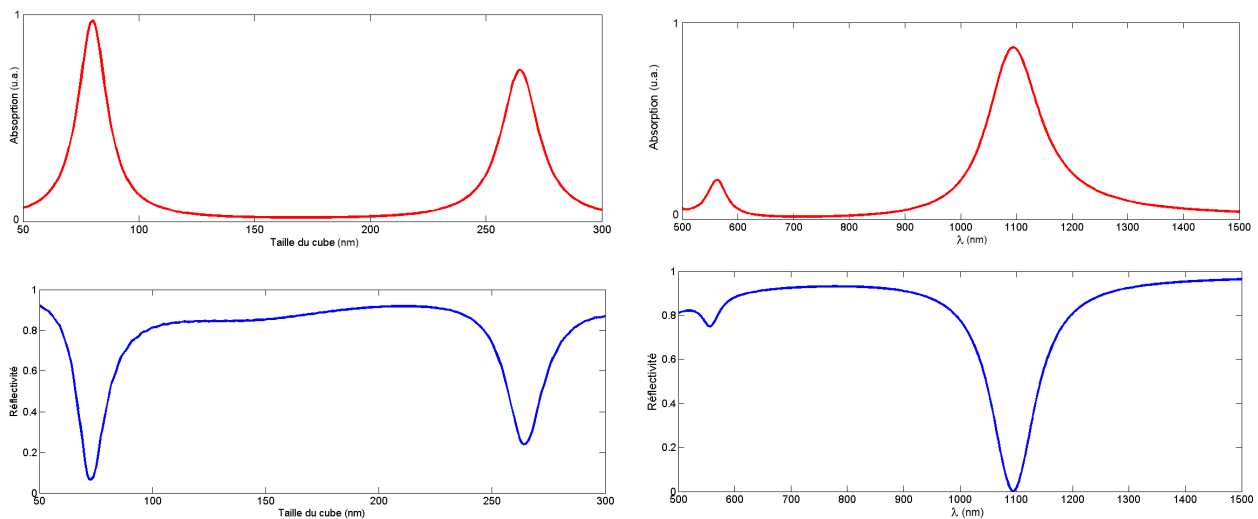


FIGURE 3.16 – Réponse optique de patchs de section carrée de 85 nm de côté en incidence normale. En haut, les prédictions du modèle pour l’absorption sont représentées. En bas, les résultats de simulation pour la réflectivité sont montrés. A gauche, on fait varier la taille du patch, pour une épaisseur de diélectrique de 12 nm. A droite, on fait varier la longueur d’onde pour une épaisseur de diélectrique de 5 nm. La bonne correspondance des prédictions du modèle et de la simulation montre les capacités du modèle à prendre en compte son fonctionnement physique.

taille commence à diminuer. Ce phénomène de diminution de l’absorption avec l’angle est donc assez complexe, mais son origine est bien là.

Pour les résonances avec un nombre pair de ventres (avec un champ magnétique impair), on comprend à l’aide du modèle pourquoi elles ne sont pas excitées en incidence normale. Mais dès que l’angle d’incidence augmente un peu, la suppression interférométrique cesse et elles deviennent plus efficaces pour absorber la lumière. Cela pourrait constituer une façon originale de s’assurer que l’onde incidente arrive bien normalement à la surface, en cherchant ce minimum de réflexion à la résonance.

Au delà de ces aspects, savoir que l’on peut ainsi contrôler la section efficace d’un résonateur en faisant varier l’angle d’incidence pourrait se révéler important à l’avenir si on voulait par exemple utiliser des méthodes d’auto-assemblage basées sur des photo-polymères pour disposer les cubes. C’est une des raisons qui ont aussi motivé cette étude.

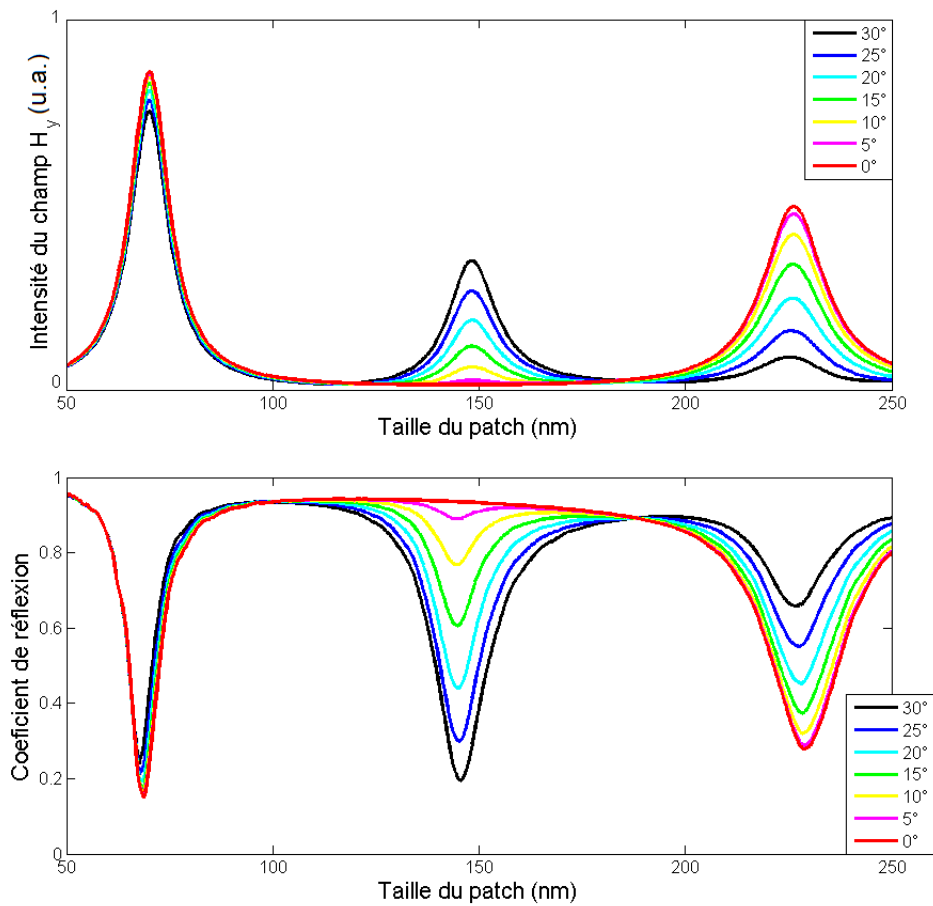


FIGURE 3.17 – Spectres d'absorption d'une structure avec un film diélectrique d'épaisseur 5 nm et une longueur d'onde de 950 nm en fonction de la longueur du patch avec différents angles d'incidence allant de 0° à 30° (en haut tirée du modèle, en bas basée sur les codes modaux)

CHAPITRE 4

TRANSMISSION EXALTÉE PAR LES RÉSONATEURS À GAP-PLASMON

A l'heure actuelle, les résonateurs à gap-plasmons sont toujours excités directement, par un champ incident et c'est évidemment la meilleure façon de le faire. Cela peut cependant se révéler peu pratique, notamment dans le cas de la détection de molécules. On sait d'autre part, depuis notamment les travaux sur la transmission exaltée à travers des réseaux de trous[81] ou de fentes[82] très sous-longueur d'onde, que des résonances permettent d'augmenter très fortement la transmission d'un film métallique. Les deux exemples historiquement importants sont les réseaux de trous cylindriques percés dans un film métallique et les réseaux de fentes. Dans le cas des trous circulaires la périodicité du réseau excite des plasmons de surface, qui se couplent alors à ceux se propageant de l'autre côté du film, qui sont eux-même rayonnés, provoquant la transmission[81]. Les trous ont un double rôle : ils permettent d'exciter les plasmons de surface et ils facilitent le couplage entre les deux côtés du film métallique. Dans le cas des réseaux de fentes, il se produit une résonance de cavité finalement très semblable à ce qui se passe dans le cas des résonateurs à gap-plasmons. La différence majeure étant que les fentes, bien que très sub-longueur d'onde, ne sont pas dans le régime où l'index effectif du mode est très différent de celui du diélectrique[82].

Nous nous sommes donc demandé s'il était possible d'utiliser les résonances d'antennes patches pour augmenter la transmission de la lumière à travers un film métallique servant donc de substrat pour les résonateurs à gap-plasmon. Cette idée peut être liée à des travaux menés à Duke University sur l'effet Purcell[2]. Une des conclusions de ces travaux est que, quand l'interstice sous les nanocubes utilisés comme patches est un peu grand, le résonateur diffuse plus la lumière. Cela peut se comprendre en pensant que le coefficient de réflexion du gap-plasmon est alors plus faible et que la cavité laisse ainsi plus fuir la lumière. Un autre de nos buts était de comprendre au passage à quel point il était possible d'exciter les nano-antennes par en dessous, en ayant toujours à l'esprit de se servir des résonateurs à gap-plasmon comme des objets extrêmement sensibles à leur environnement. Nos premières simulations nous ayant montré que les résonateurs à gap-plasmons pouvaient être excités à travers le film métallique, nous avons alors décidé de réaliser l'expérience correspondante, en prenant conscience aussi qu'au sein du laboratoire, toutes les compétences et les capacités techniques étaient réunies pour le faire.

4.1 Étude numérique

La structure que nous avons décidé d'étudier est donc celle d'un film métallique mince sur lequel on dépose des patches pour former les résonateurs à gap-plasmon. La structure est représentée figure 4.1.



FIGURE 4.1 – Schématisation de la structure modélisée

Pour modéliser la structure présentée ci-dessus, nous avons utilisé les codes modaux présentés dans le deuxième chapitre. Comme pour la structure du troisième chapitre, le problème peut être découpé en quelques couches invariantes en z . Cette fois cependant, l'onde incidente arrive depuis sous le substrat puisqu'on considère une structure en transmission.

Pour que la structure fonctionne, il faut s'assurer de la possibilité d'exciter le gap-plasmon à travers le métal. Le gap-plasmon ne peut être excité que si un champ magnétique oscille à la fréquence de résonance du gap-plasmon aux bords de la cavité. Il faut donc dans notre cas qu'une onde atteigne les bords sous les nanocubes. Cela est possible dans le cas d'une couche de métal d'épaisseur inférieure à deux fois l'épaisseur de peau dans le métal. En effet, l'onde incidente arrivant sur le métal est majoritairement réfléchi, en excitant une onde évanescente. Ces ondes évanescentes n'ont assez d'intensité pour traverser le métal que si l'épaisseur de celui-ci est assez faible. Au bout d'une fois l'épaisseur de peau, environ 25 nm, il reste encore 37 % de l'amplitude incidente. Après deux épaisseurs de peau, il ne reste plus que 10% de l'amplitude du champ incident. C'est trop peu. À l'inverse, si le champ parvenant de l'autre côté du film métallique est suffisamment intense, l'onde évanescente peut alors exciter le gap-plasmon. Afin de vérifier cela, nous avons simulé la réponse optique de la structure. La carte du champ H_y obtenu par simulation est représentée sur la figure 4.2. Cette image montre que la résonance sous les nanocubes peut effectivement être excitée à travers la couche métallique.

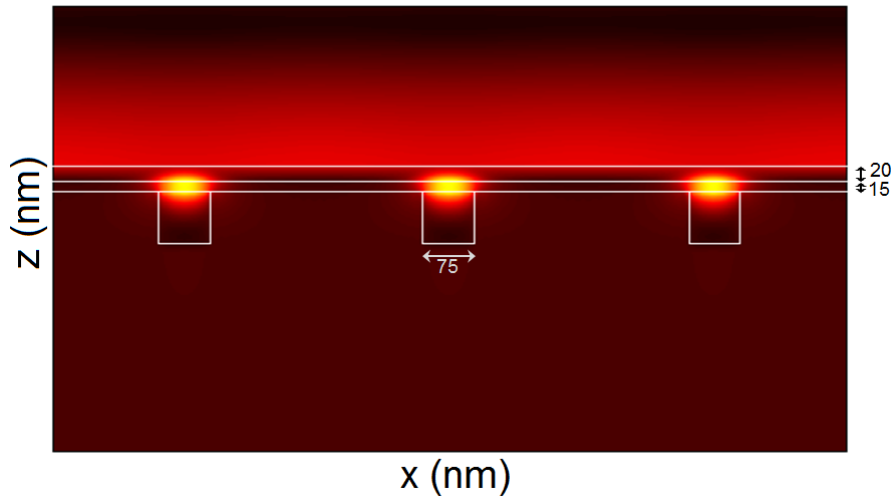


FIGURE 4.2 – Carte du champ de la structure à une longueur d’onde de 850 nm avec une épaisseur de métal de 20 nm, une de diélectrique de 15 nm et des nanocubes de 75 nm

Une fois la résonance excitée, les patchs doivent diffuser la lumière à la fréquence de résonance. Pour le vérifier, nous avons tracé les spectres de réflexion et de transmission de la structure, présentés figure 4.3. Ce diagramme montre la réflectivité (en vert) et la transmission (en noir) d’un dépôt d’or de 20 nm d’épaisseur avec une couche de diélectrique de 15 nm. Puis en bleu et rouge, sont respectivement représentées les courbes de réflexion et de transmission avec des nanocubes de 75 nm placés sur le film diélectrique. Sur ces courbes, nous pouvons remarquer que pour des longueurs d’onde inférieures à 800 nm, la réflexion de la structure est plus forte si des nanocubes sont présents sur la structure. Cependant, pour des longueurs d’onde proches de celles de la résonance des gap-plasmons (aux environs de 840 nm), la transmission est supérieure lorsque des nanocubes sont déposés. Dans le cas présenté ici, la transmission augmente de 10% à la résonance mais il est probablement possible d’optimiser la structure pour exalter la transmission encore plus. Cependant, si on peut avoir confiance dans le fait que les simulations bidimensionnelles sont une bonne approche du problème en ce qu’elles permettent de situer la résonance et son amplitude, ainsi que de donner un bon ordre de grandeur de l’effet attendu, on sait qu’il ne s’agit pas d’une simulation parfaitement réaliste. Par expérience, nous savons aussi que les simulations avec des arrêtes droites ne sont pas toujours simples à faire coïncider avec l’expérience[41]. L’optimisation avec les outils dont nous disposons n’est donc pas très pertinente ici.

Enfin, il faut remarquer la forme caractéristique du profil de résonance obtenu ici. Comme nous cherchons une structure qui puisse utiliser les résonances pour laisser passer la lumière d’un continuum à un autre, cela impose que ces résonances soient fortement couplées aux continuum. Il est bien connu que dans ce cas on obtient des profils de résonance qui ne sont plus aussi simples que ceux que l’on trouve quand on recherche juste une absorption. A la place, le profil obtenu est un profil de Fano[83]. Il comporte bien un pic de transmission, mais aussi un pic d’absorption. Les deux sont liés à la présence d’un résonateur, mais celui-ci se comporte alors comme un absorbeur ou un diffuseur suivant la fréquence considérée.

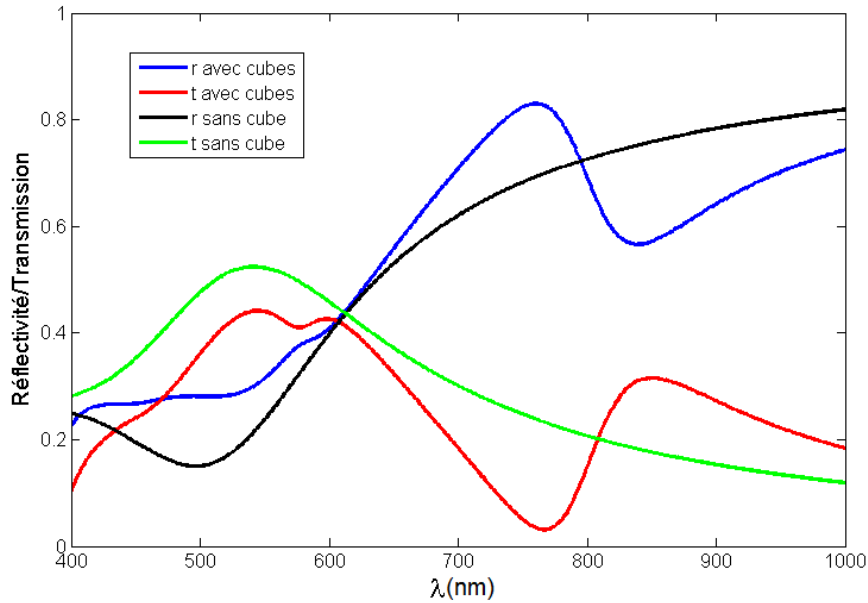


FIGURE 4.3 – Spectres de réflexion de la structure sans cube en noir et avec cubes en bleu et de transmission de la structure sans cube en vert et avec cubes en rouge. Les nanocubes mesurent 75 nm, le diélectrique a une épaisseur de 15 nm et celle du métal est de 20 nm. L'onde incidente est une onde plane polarisée en TM et a un angle d'incidence nul.

La structure présentée ici permet donc de transmettre plus facilement une onde à travers un métal. Sachant que la résonance des gap-plasmons est très sensible à son environnement, ce type de structure pourrait être utilisé pour fabriquer des capteurs biologiques peut-être plus facile à solliciter optiquement qu'en traversant d'abord l'échantillon, forcément du côté des résonateurs.

4.2 Fabrication

Pour créer ces structures, plusieurs étapes sont nécessaires et elles doivent toutes être maîtrisées. En premier lieu, il faut déposer une couche d'or d'épaisseur choisie sur une lame de verre. Ces dépôts ont pu être effectués par deux moyens différents : nous avons fait des dépôts dans un bâti ultra-vide mais aussi grâce à un bâti d'évaporation thermique sous vide. Une fois l'or déposé, il a fallu placer sur cette couche métallique un film diélectrique au moyen d'une méthode dite layer by layer puis déposer les nanocubes.

4.2.1 Dépôt de la couche d'or

Le dépôt d'une couche métallique sur un substrat nécessite l'absence d'impureté. Le dépôt doit donc être effectué dans une enceinte sous un vide poussé afin de contrôler l'environnement. Dans notre laboratoire, deux équipes utilisent des techniques différentes dans deux enceintes sous vide capables de produire des dépôts métalliques. La première équipe utilise un bâti ultra-vide alors que la seconde se sert d'un bâti d'évaporation thermique sous vide. Le bâti ultra-vide utilise un vide plus poussé que le bâti d'évaporation thermique cependant le temps de dépôt est environ 150 fois plus lent. Nous allons présenter dans la suite les deux enceintes et comment les dépôts ont pu être fait et les différents paramètres utilisés.

Bâti Ultra-vide

Dans ce paragraphe, je présenterai le bâti ultra-vide composé de trois chambres (voir figure 4.4). Ensuite, j'expliquerai son utilisation afin d'effectuer des dépôts d'or d'épaisseur choisie.

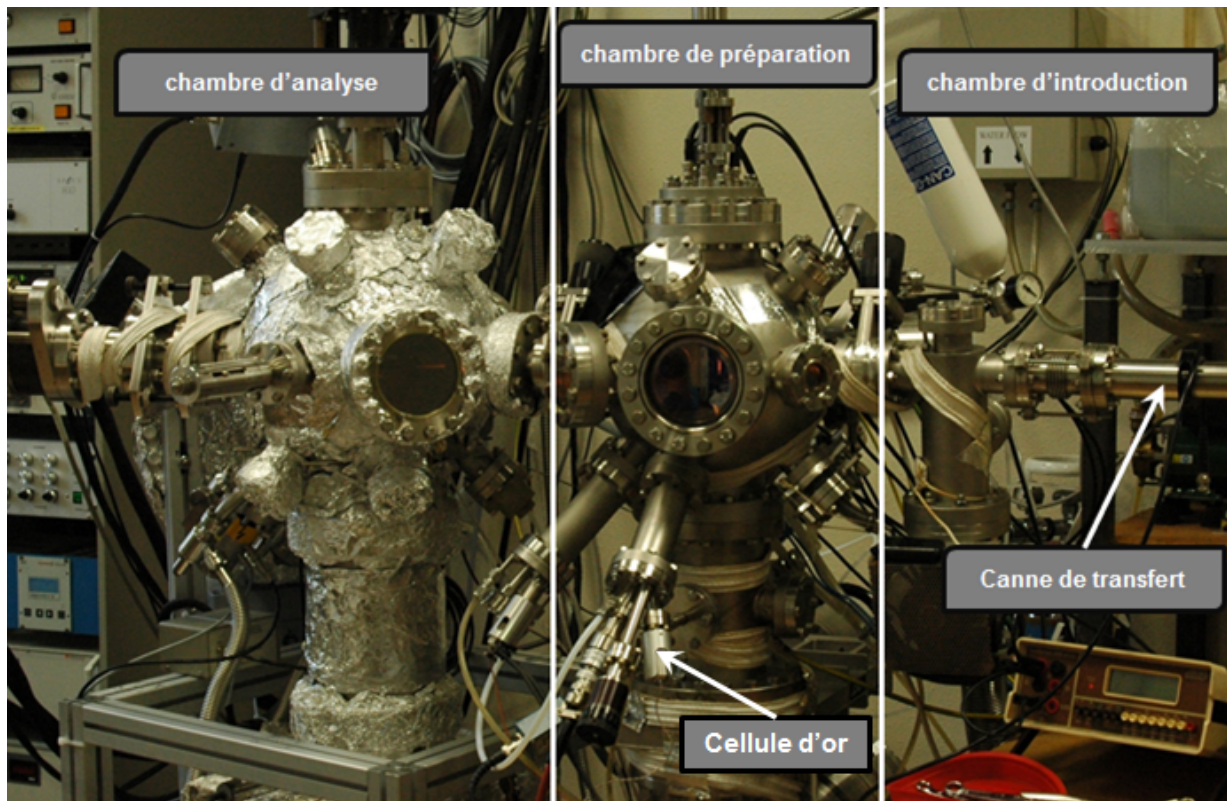


FIGURE 4.4 – Photographie du bâti ultra-vide

Le bâti comporte trois chambres. La première, la chambre d'introduction, sert à insérer les échantillons dans le bâti. Son volume est très restreint afin de pouvoir retrouver rapidement un vide secondaire après ouverture à l'air libre. Une pompe turbo-moléculaire assure un vide de 10^{-6} Pa. Une canne de transfert permet le passage de l'échantillon dans les différentes chambres. La chambre d'introduction est isolée de la chambre de préparation par une vanne hermétique. Cela protège le vide dans les autres chambres lors de l'ouverture de la chambre d'introduction.

La deuxième chambre est la chambre de préparation. C'est à l'intérieur de celle-ci que les échantillons peuvent être nettoyés puis structurés dans un vide à 10^{-9} Pa. À ces fins, plusieurs équipements sont ajoutés à cette chambre. Parmi ces équipements, on peut trouver un canon à ions qui permet de graver la surface mais surtout de la nettoyer au besoin. Il y a aussi diverses sources permettant d'envoyer différents éléments sur la surface pour la structurer. Ainsi, à l'avant, on peut voir une cellule qui permet d'évaporer des atomes d'or sur la surface. Lors des manipulations, cette cellule est chauffée afin d'avoir de l'or sous forme gazeuse. La différence de pression entre la cellule et l'intérieur de la chambre entraîne la création d'un flux d'atomes d'or allant de la cellule au centre de la chambre. Il suffit alors de placer l'échantillon au centre face à la cellule pour que l'or vienne s'y déposer (voir figure 4.5). Entre la cellule et le porte-échantillon est placé un cache qui permet à tout moment de stopper le bombardement d'or sur la surface. Ainsi le contrôle du temps d'exposition est aisé. Le porte-échantillon peut être chauffé afin d'homogénéiser la surface grâce à la diffusion thermique des atomes (dans le cas de croissance de type Stranski-Krastanov ou Volmer-Weber) par contre un chauffage trop fort peut endommager la surface.

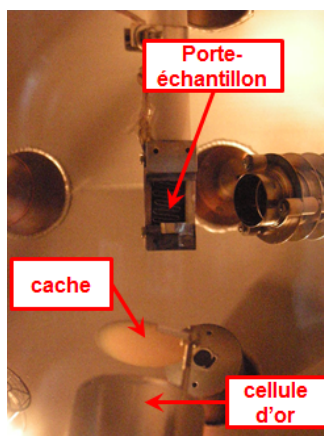


FIGURE 4.5 – Photographie de l'intérieur de la chambre de préparation

Pour vérifier la structuration de la surface, nous pouvons utiliser la chambre d'analyse dans laquelle règne une pression de l'ordre de 10^{-9} Pa. Cette chambre contient tous les appareils utiles pour effectuer une analyse par spectroscopie XPS (X-rays Photoelectron Spectroscopy) permettant d'analyser les premières dizaines de nanomètres de la surface. Pour la spectroscopie XPS, il faut une source de rayons X et un analyseur d'électrons (ici un analyseur hémisphérique) (voir figure 4.6) tous deux placés face à l'échantillon (voir figure 4.7).

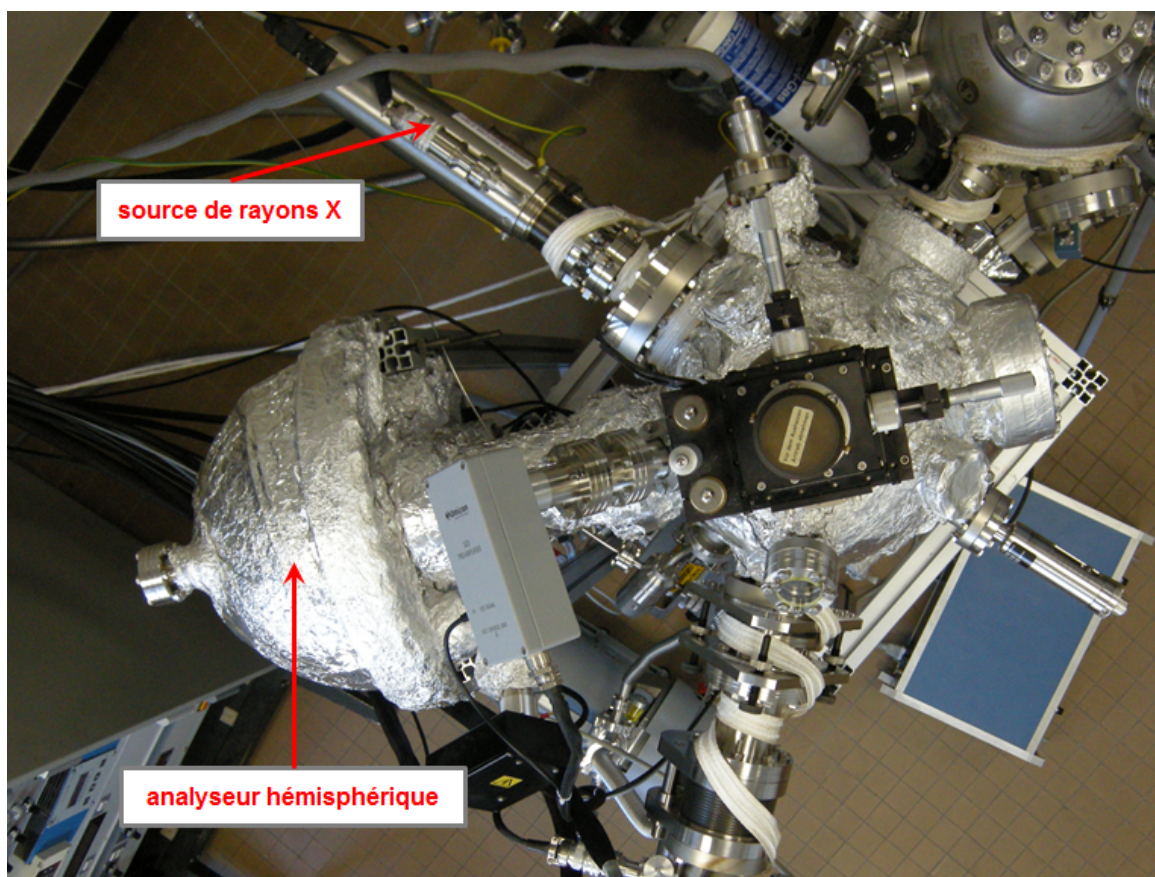


FIGURE 4.6 – Photographie de la chambre d'analyse vue du dessus

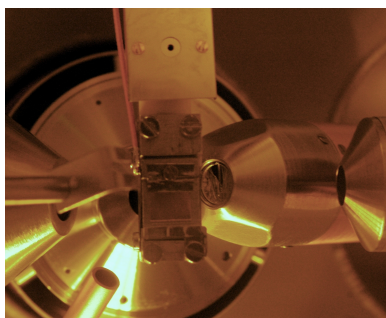


FIGURE 4.7 – Photographie de l'intérieur de la chambre d'analyse

La spectroscopie photoélectrique X ou ESCA (Electron Spectroscopy for Chemical Analysis) est une méthode d'analyse de surface basée sur l'énergie cinétique de photoélectrons[84]. L'échantillon à analyser est placé face à l'analyseur. Un faisceau de rayons X éclaire la surface à analyser qui produit entre autres des photoélectrons. Ces derniers sont recueillis par l'analyseur qui mesure leur énergie cinétique. Cette énergie est caractéristique du matériau dont il provient. Ainsi le spectre enregistré par l'analyseur comporte différents pics permettant de retrouver la composition chimique de l'échantillon (en qualité mais aussi en quantité). Si on analyse un échantillon avant et après un dépôt d'or, on peut voir des pics apparaître sur le spectre comme le montre la figure 4.8. En effet, sur cette figure, il est possible de voir des pics représentant de l'or apparaître après le dépôt aux alentours de 350 eV et 100 eV .

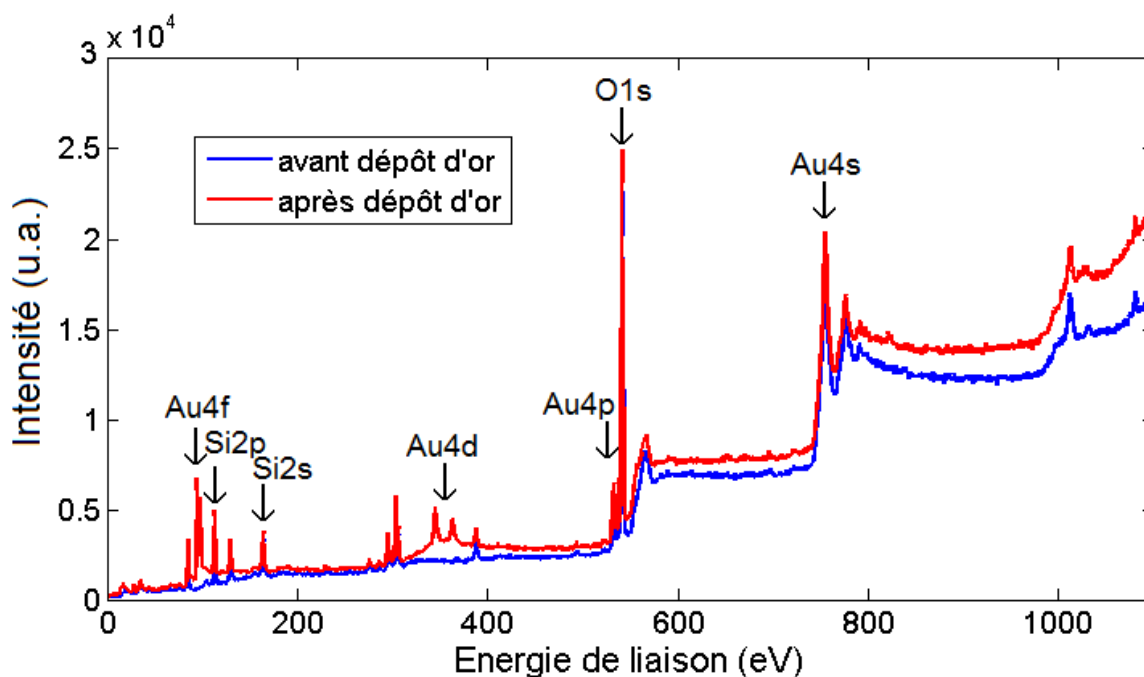


FIGURE 4.8 – Spectre général avant et après le dépôt d'or

Avant ces travaux, le bâti n'avait jamais été utilisé pour déposer une couche d'or avec une épaisseur fixe. Il a donc fallu trouver un moyen de connaître la vitesse de dépôt de l'or. Pour cela, nous avons effectué un test de calibrage. Nous avons effectué un dépôt d'or en analysant la surface toutes les deux secondes de dépôt. En analysant la surface pour plusieurs temps de dépôts, on peut dire que la croissance de l'or est de type Frank van der Merwe car l'intensité des pics d'or de la spectroscopie XPS augmente linéairement entre deux couches pleines. Il est possible de mesurer l'épaisseur de la couche d'or en comparant l'intensité d'un pic dû à l'or

sur les spectres XPS des différents temps d'exposition (voir figure 4.9). Cela nous a permis de calibrer la vitesse de dépôt d'une monocouche d'or. On a ainsi obtenu une vitesse de dépôt de $1,6 \text{ \AA}$ par minute.

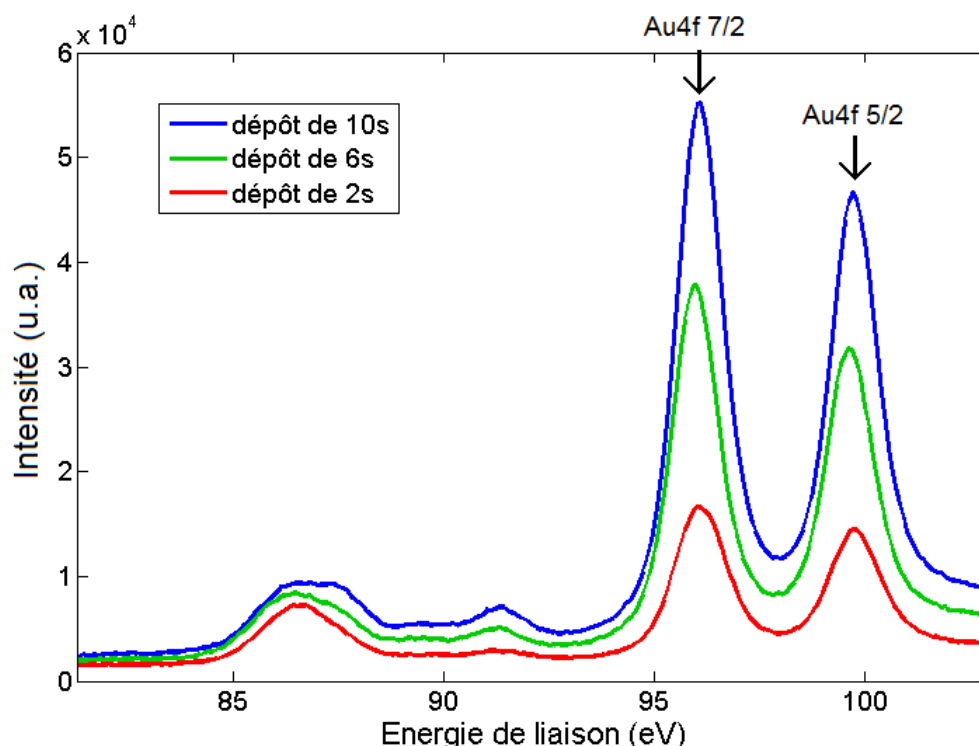


FIGURE 4.9 – Spectre du pic Au4f du dépôt d'or selon le temps d'exposition (2 secondes en rouge, 6 secondes en vert et 10 secondes en bleu)

Après quelques dépôts, nous avons constaté que la croissance d'or directement sur verre peut entraîner des défauts de surface. Afin de les éviter, nous avons dû fonctionnaliser la surface de verre au moyen de bains de chrome. La vérification de la rugosité des surfaces d'or à l'AFM montre que ces bains remplissent leur rôle et les surfaces n'ont pas de défauts.

Bâti d'évaporation thermique sous vide

Une autre solution pour effectuer des dépôts d'or sur du verre est d'utiliser un bâti d'évaporation thermique (voir figure 4.10). L'évaporateur avec lequel nous travaillons est un Auto 306 de chez Edwards. Il est composé d'une pompe primaire permettant d'obtenir un vide de l'ordre de 10^{-2} mbar associée à une pompe secondaire permettant d'atteindre un vide de l'ordre de 10^{-7} mbar.

Dans ce type d'évaporateur, l'échauffement d'un creuset (voir figure 4.11 à droite) permet à la matière qu'il contient d'atteindre son point de fusion puis, dans un second temps son point de vaporisation. On a donc deux processus élémentaires qui se produisent : l'évaporation d'une source chauffée puis la condensation à l'état solide de la matière évaporée sur le substrat de notre choix. L'échauffement de la matière peut être engendré par plusieurs techniques dans notre cas elle est basée sur l'effet Joule : un courant de quelques dizaines d'Ampères passe dans le creuset qui contient la matière à évaporer.

Dans notre cas, c'est un fil d'Or qui est placé dans le creuset. Il nécessite un courant de l'ordre de 32 A pour être évaporé puis déposé sur le substrat choisi. L'échantillon est placé en haut de la cellule, face vers le bas (voir figure 4.11 à gauche). Devant lui un cache de protection peut être placé à tout moment afin d'arrêter le dépôt. Un quartz associé à un système électronique placé proche de l'échantillon, permet de mesurer très précisément la variation de la masse déposée sur l'échantillon et ainsi d'en déduire en fonction des caractéristiques du métal à déposer l'épaisseur de la couche. La vitesse de dépôt peut être réglée en agissant sur la valeur du courant. Dans notre cas, une vitesse de dépôt de 5 Å par seconde a été choisie.

Les échantillons préparés avec le bâti d'évaporation thermique peuvent mesurer plusieurs cm^2 ce qui peut faciliter leur manipulation. L'épaisseur de la couche déposée est calculée au demi-Ångström près. Cependant, cette technique comporte un certain nombre d'inconvénients. Le premier est le temps d'attente entre le placement de l'échantillon dans la cellule et le début du dépôt. Il faut en effet plusieurs heures pour que le vide soit assez fort pour qu'un dépôt soit possible. Le second grand inconvénient est la taille de la cellule. Étant donné que le gaz d'or se diffuse partout, les pertes sont très importantes et il faut donc en utiliser beaucoup plus que dans le bâti ultra-vide.



FIGURE 4.10 – Photographie de la cellule évaporatrice

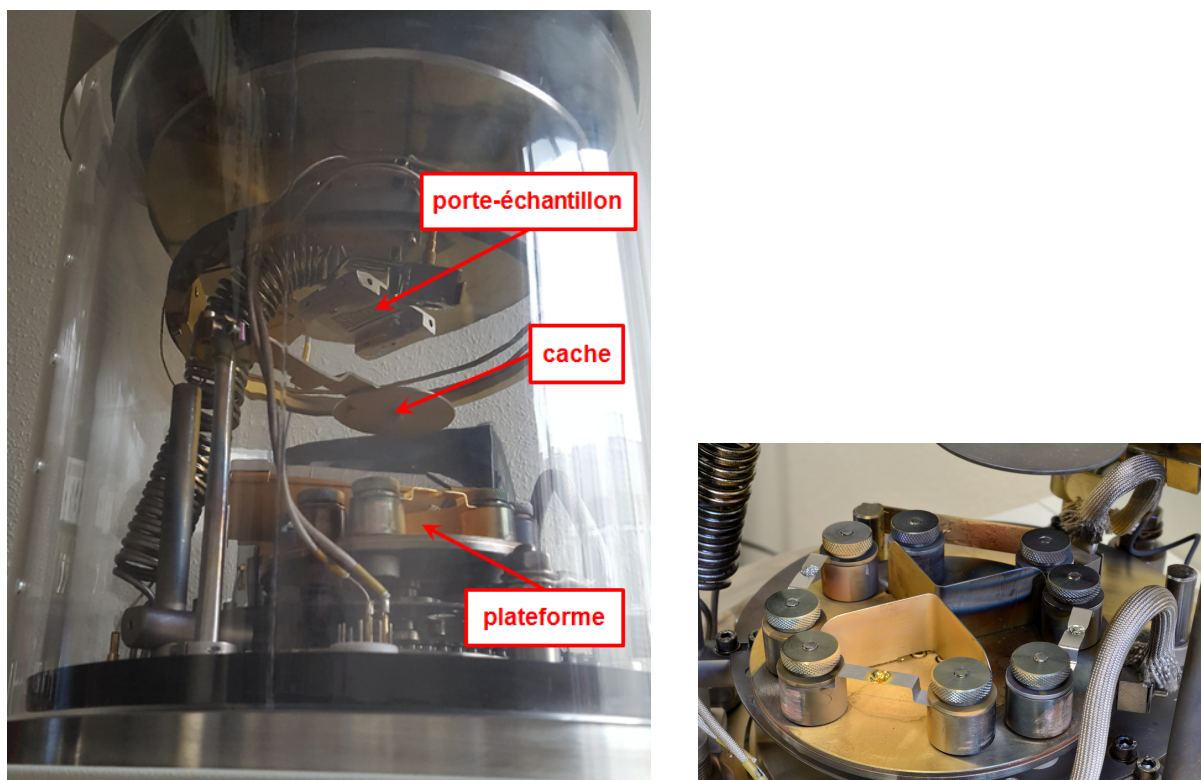


FIGURE 4.11 – Photographies des parties essentielles de la cellule à gauche et plus particulièrement de la plateforme de dépôt des métaux à droite

4.2.2 Fabrication d'une couche de diélectrique et dépôt des nanocubes

Avant de déposer les nanocubes, il faut créer le film de diélectrique. Ce film est déposé par la méthode appelée layer by layer[85]. Cette méthode consiste à déposer des couches de monomères les unes après les autres afin de créer un film diélectrique de quelques nanomètres. Dans nos expérimentations, nous utilisons deux polymères différents : le PSS (polystyrène sulfonate de sodium) et la PAH (poly allylamine hydrochloride). Les monomères de chacun de ces polymères sont présentés dans la figure 4.12.

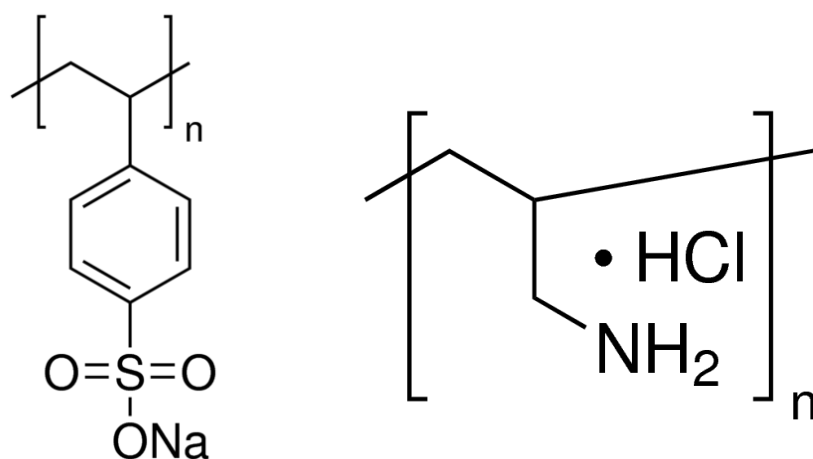


FIGURE 4.12 – Formules des monomères de PSS à gauche et PAH à droite

L'accroche des polymères se fait grâce à des liaisons électrostatiques. En effet, plongé dans un bain de chlorure de sodium, le PAH prend une charge positive en libérant un ion Cl^- alors que le PSS prend une charge négative en libérant un ion Na^+ . Les électrons de conduction du métal crée un écrantage qui fait apparaître la surface comme chargée négativement. Ainsi, en déposant du PAH sur le métal, le polymère ayant une charge positive est attiré par la surface et des liaisons électrostatiques se créent entre chaque monomère des polymères et le métal. Si la surface est exposée plusieurs minutes (environ 5) au PAH, ce dernier la recouvre totalement. Le métal ainsi recouvert de PAH forme une nouvelle surface chargée positivement cette fois. Si maintenant, nous plongeons cette surface dans un bain de PSS, les polymères de PSS viendront de la même manière recouvrir la nouvelle surface. Il sera alors possible de déposer à nouveau une couche de PAH et ainsi de suite jusqu'à obtenir l'épaisseur voulue (voir figure 4.13).

Ces étapes se font par bains successifs (voir figure 4.14). Le premier bain est une solution à base de PAH. Le PAH est dilué de manière à obtenir une concentration de 3 mmol.L^{-1} dans une solution de $NaCl$ de concentration 1 mol.L^{-1} . Après avoir plongé la couche métallique dans ce bain durant 5 minutes, nous la retirons puis la rinçons à l'eau désionisée et la séchons avec un jet d'air comprimé. Ensuite, un bain de rinçage de 5 minutes dans une solution de $NaCl$ de 1 mol.L^{-1} est nécessaire. Après avoir rincer à l'eau et sécher la structure, elle est plongé pendant 5 minutes dans un troisième bain constitué de PSS (3 mmol.L^{-1}) dans une solution de $NaCl$ de 1 mol.L^{-1} . Enfin, un second bain de rinçage identique au premier sert à nettoyer la surface. L'ensemble de ces quatre bains servent à former une bicouche de diélectrique mesurant environ 1 nanomètre d'épaisseur. Il reste à continuer ces bains successifs dans le même ordre jusqu'à ce que le film diélectrique mesure l'épaisseur désirée (dans notre cas entre 5 et 15 nm).

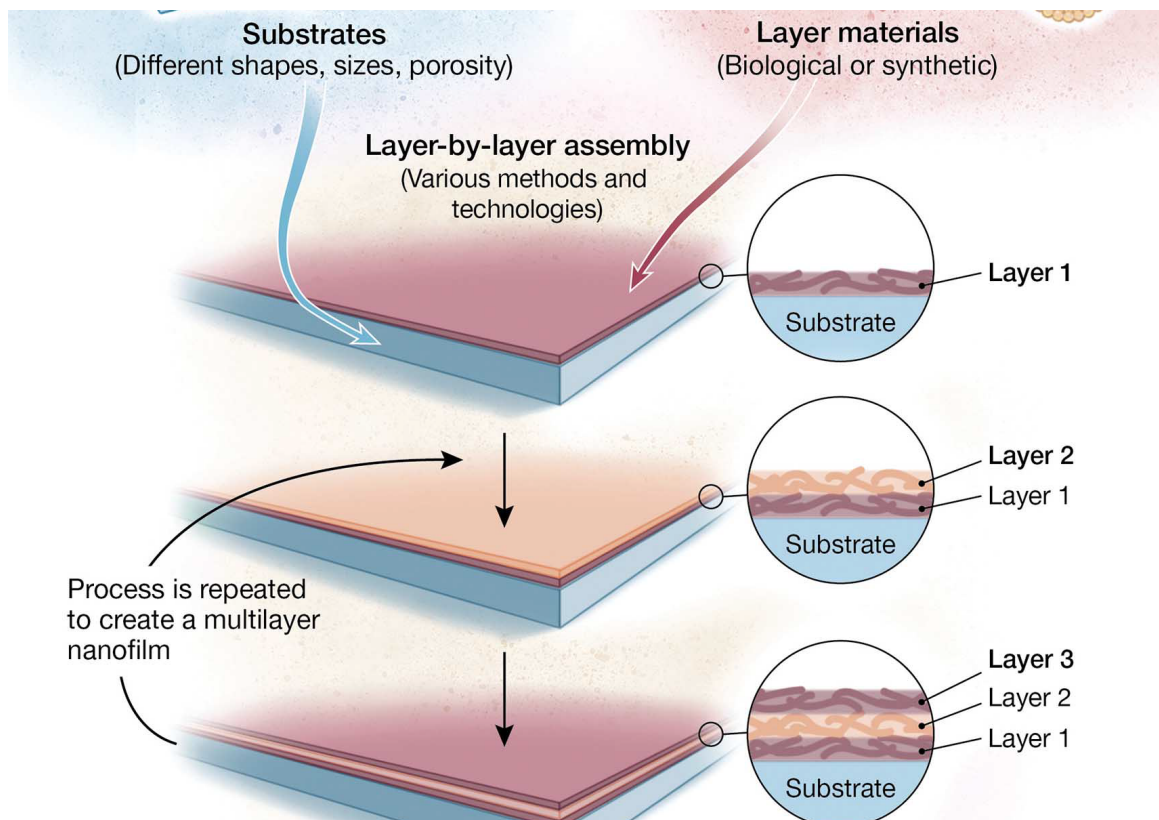


FIGURE 4.13 – Schématisation de la création de couches successives de polymères diélectriques (Image tiré de l'article Technology-driven layer-by-layer assembly of nanofilms[85])

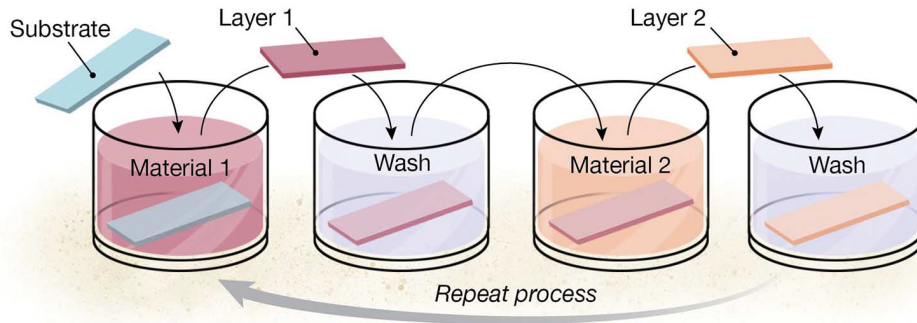


FIGURE 4.14 – Schématisation de la méthode des bains successifs utilisée (Image tiré de l'article Technology-driven layer-by-layer assembly of nanofilms[85])

Le nombre de monocouches de polymères doit être impair de façon à ce que le dernier polymère déposé soit du PAH. Ainsi la surface finale sera chargée positivement. Cela nous permettra de pouvoir déposer les nanocubes de métal. En effet, lors de la synthèse des nanocubes[86], ils se retrouvent enfermés dans une couche de PVP (polyvinylpyrrolidone) d'environ 3 nm mais gardent tout de même une charge négative. Le dépôt des nanocubes se fait donc tout simplement en plaçant une goutte de nanocubes plongés dans une solution d'éthanol sur la structure. Les nanocubes chargés négativement se retrouvent attirés par la surface et vont s'adsorber pour s'auto-assembler. De plus, étant tous chargés négativement, ils se repoussent et se répartissent de manière homogène sur la surface. Une heure après le dépôt de la goutte de la solution, les nanocubes se sont adsorbés et l'échantillon peut être nettoyé à l'eau désionisée puis séché.

Une fois toutes ces manipulations effectuées, il ne reste plus qu'à rincer la structure et la protéger en attendant de pouvoir la caractériser.

4.3 Caractérisation

Après avoir fabriqué les structures avec des nanocubes, il nous reste à mesurer leurs caractéristiques physiques, vérifier que les structures bien l'allure attendue, et vérifier qu'elles se comportent de la façon prévue par les modélisations pour ce qui touche à leur réponse optique. Pour cela, nous regarderons la répartition des nanocubes et leur dépôt sur la surface puis nous étudierons la réflectivité et la transmittance de la structure.

4.3.1 Microscopie Électronique à Balayage (MEB)

Avant toute autre caractérisation optique, il faut vérifier l'état du dépôt de nanocubes. Nous avons utilisé un MEB (microscope électronique à balayage) Zeiss disponible via la société 2MA-Tech. Le substrat utilisé pour fabriquer la structure étant du verre, l'imagerie au MEB requiert la préparation des échantillons. Un film conducteur d'or est évaporé sur la face arrière du verre de manière à ce que les électrons partent à la masse et ne gênent pas l'image. Pour vérifier la répartition des nanocubes, nous commençons par regarder la structure avec un grossissement de 5000 (voir figure 4.15). Sur cette image, nous pouvons vérifier que les nanocubes se dispersent bien sur la surface et se déposent de manière homogène. Cependant, nous pouvons déjà apercevoir des amas auxquels on ne s'attendait pas. On peut voir que la surface n'était pas parfaite avant le dépôt des nanocubes. Sur la seconde image (figure 4.16), avec un grossissement de 100 000, il est possible d'obtenir plus d'informations sur les nanocubes comme leur taille moyenne

et une distance moyenne qui permet de mesurer le taux de recouvrement de la surface par des nanocubes (environ 10%).

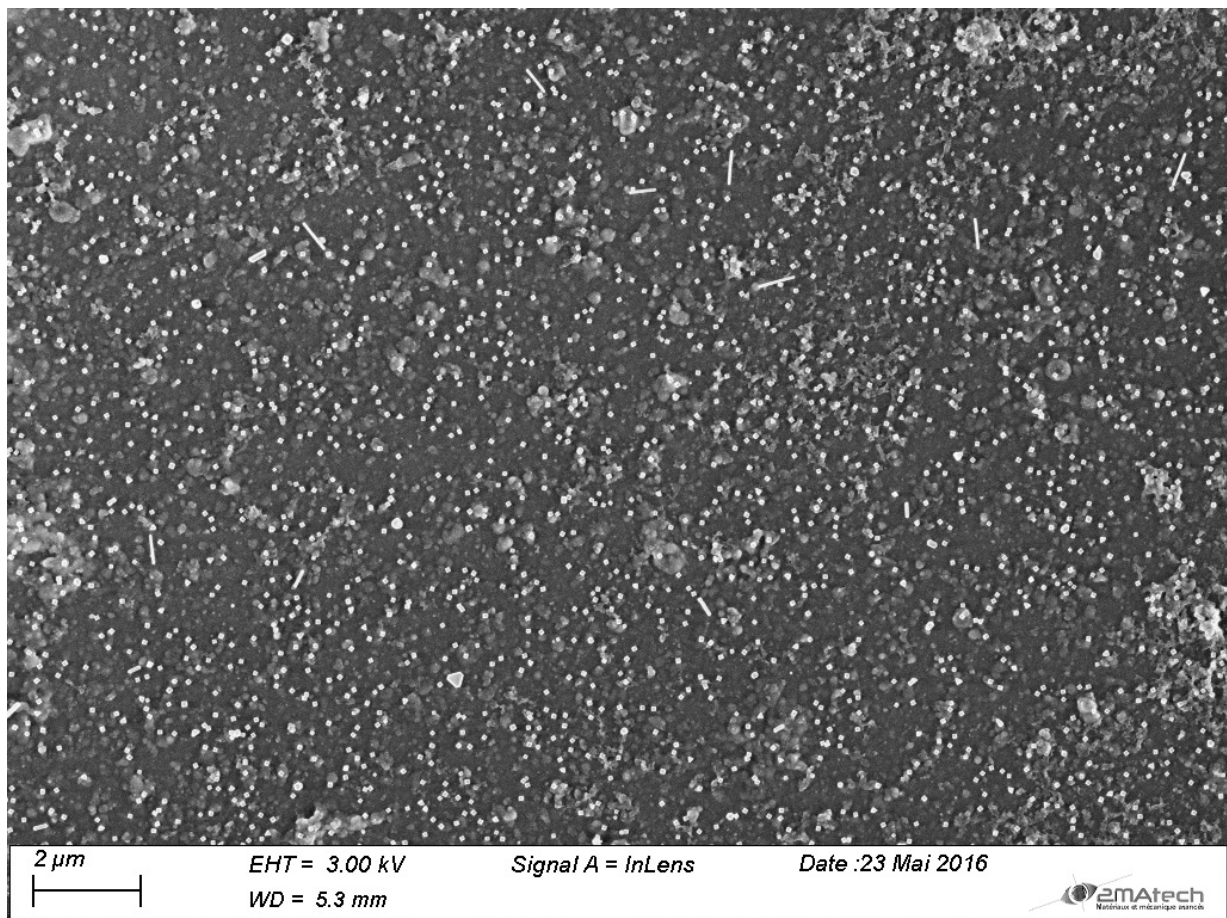


FIGURE 4.15 – Image d’une surface métallique recouverte d’un film diélectrique parsemé de nanocubes au MEB (grandissement : 5000 X)

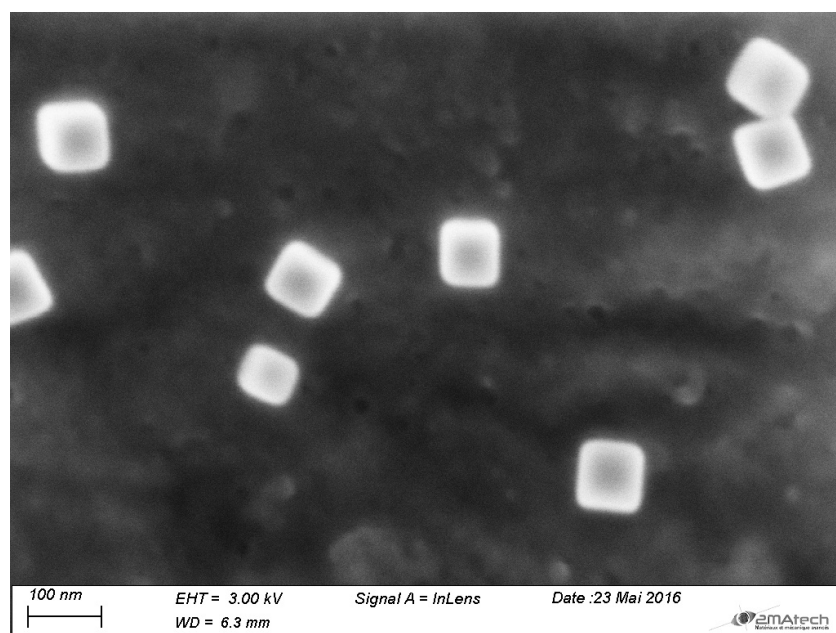


FIGURE 4.16 – Image d’une surface métallique recouverte d’un film diélectrique parsemé de nanocubes au MEB (grandissement : 100 000 X)

4.3.2 Réponse optique

La dernière étape consiste bien entendu à vérifier que la réponse optique de la structure s'approche de celle prévue par les simulations, et que l'on peut voir l'influence des nano-antennes sur les propriétés du film métallique. Même si c'est bien la transmission qui nous intéresse, la réflectivité est porteuse d'énormément d'informations. Elle permet de savoir très directement si les nanocubes résonnent. Pour cela nous allons utiliser un montage optique composé d'une source de lumière blanche, d'un porte-échantillon, d'une lentille de distance focale 25 cm et d'un spectroscopie pour un montage en transmission (voir figure 4.17). Pour le montage en réflexion, il nous faut ajouter une lame séparatrice (voir figure 4.18). Pour chacun des montages, l'échantillon est placé à deux fois sa distance focale de la lentille. La lentille est elle-même placée à la même distance de l'entrée du spectroscopie. La différence entre les deux montages réside dans la manière d'illuminer l'échantillon. Pour le montage en transmission, il suffit de placer la lumière blanche derrière l'échantillon alors que pour le montage en réflexion, il faut placer la lumière à l'avant de l'échantillon, sur un côté, et utiliser une lame séparatrice afin d'illuminer l'échantillon normalement à sa surface.

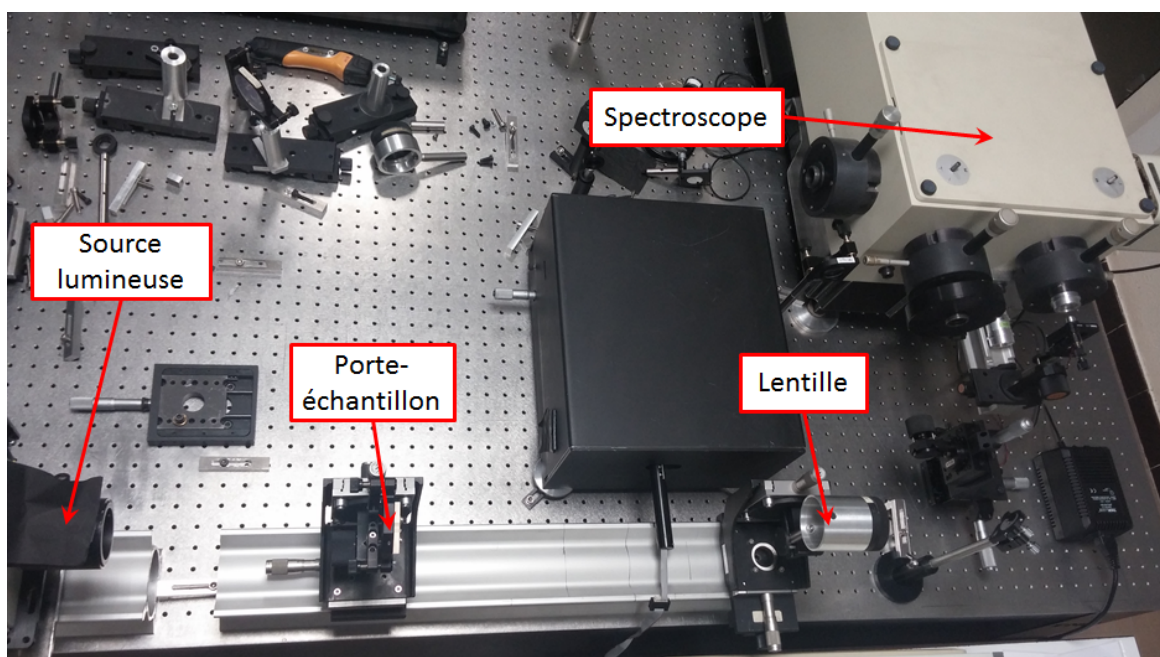


FIGURE 4.17 – Photographie du montage en transmission

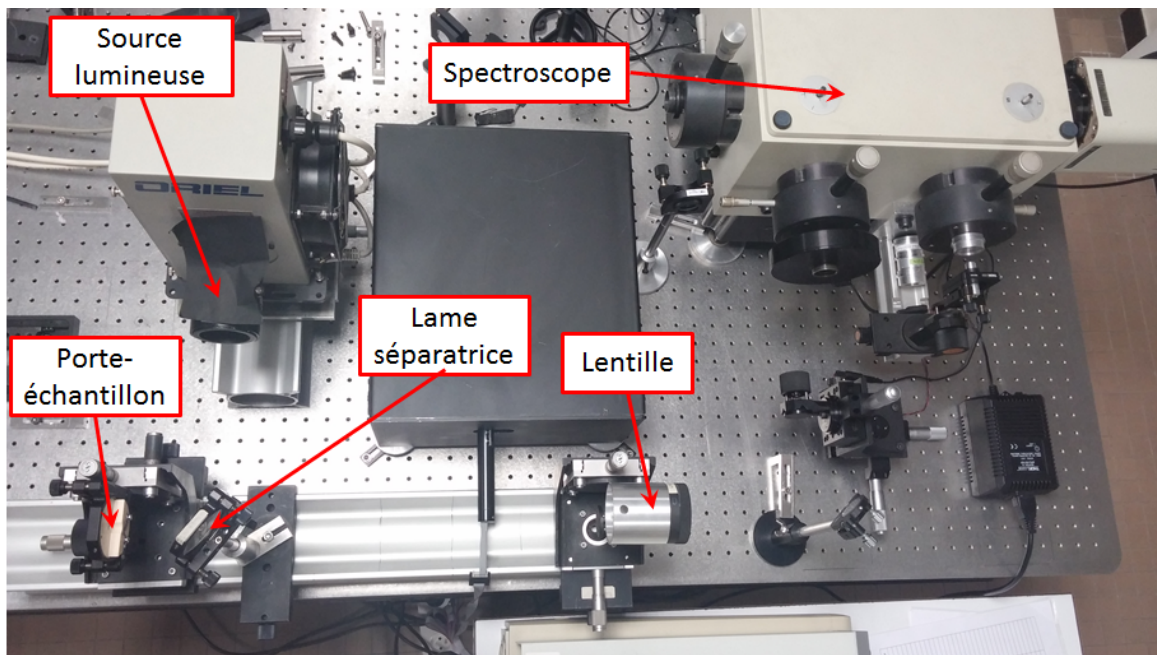


FIGURE 4.18 – Photographie du montage en réflexion

4.3.3 Spectres en réflexion et en transmission

En utilisant les montages présentés ci-dessus, il nous est possible de mesurer le spectre de réflexion et le spectre de transmission d'un échantillon. Nous avons ainsi mesuré ces deux spectres pour un même échantillon avant de déposer des nanocubes sur le film diélectrique puis après le dépôt. Nous avons placé les spectres faits avant et après le dépôt sur le même graphique afin de les comparer. Ces spectres sont présentés sur les figures 4.19 et 4.20 où le spectre fait avant est en noir et celui fait après est en rouge. Nous pouvons remarquer que la structure ne fonctionne pas de la manière que nous espérons. En effet, aucune augmentation de la transmission n'est visible. De plus les résonances visibles vers 400 nm et 500 nm ne correspondent pas du tout à la fréquence de résonance du gap-plasmon qui aurait dû être excité sous les nanocubes. Les résonances semblent plutôt provenir de l'excitation du nanocube lui-même. En effet, un nanocube peut être considéré comme une nanoparticule et donc il peut supporter un plasmon de surface localisé, une résonance propre, comme nous l'avons vu dans le premier chapitre. Ainsi ce serait cette résonance propre qui apparaîtrait et non celle du gap-plasmon.

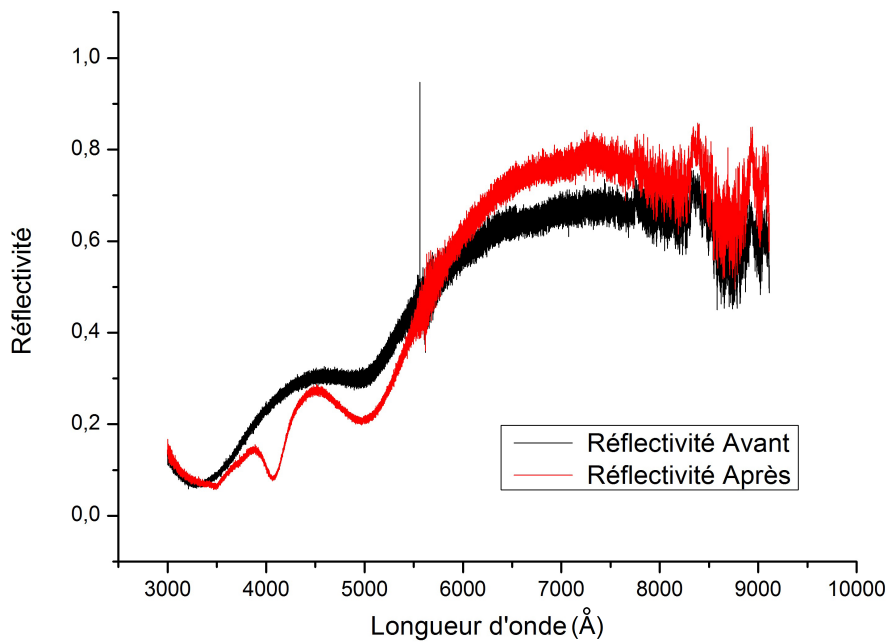


FIGURE 4.19 – Spectres de réflexion d'un échantillon avant le dépôt des nanocubes en noir et après le dépôt en rouge

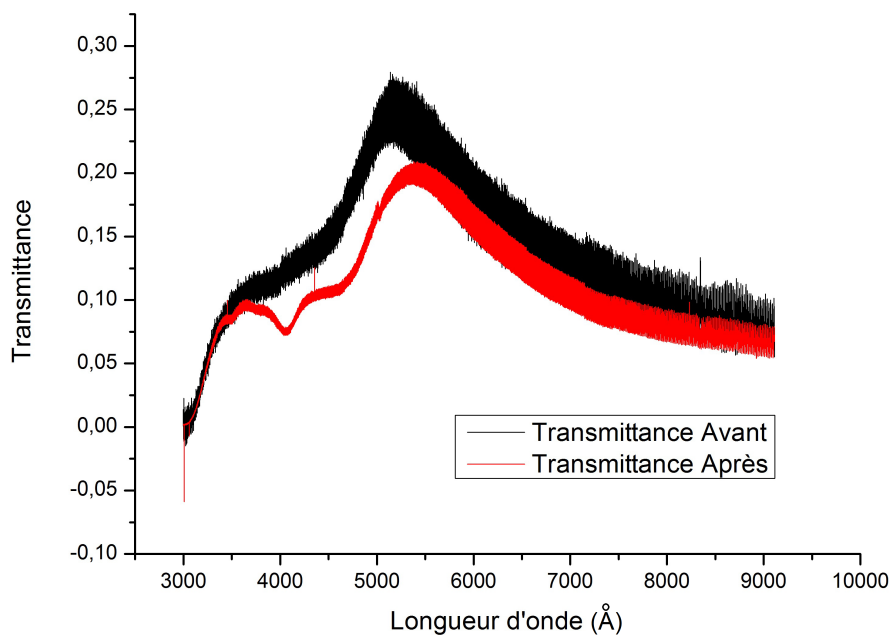


FIGURE 4.20 – Spectres de transmission d'un échantillon avant le dépôt des nanocubes en noir et après le dépôt en rouge

4.3.4 Discussion

Nous avons vu que les résultats obtenus ne concordent absolument pas avec les modélisations. Il semble que le gap-plasmon sous les nanocubes ne soit pas du tout excité. Pourtant les nanocubes sont déposés sur la surface. Si nous regardons une image MEB de la surface avec le film diélectrique et les nanocubes présentée sur la figure 4.21, nous observons à nouveau des amas clairs. Ces amas sont formés de matière diélectrique, il s'agit donc de polymères qui ne

se sont pas déposés horizontalement. Ainsi la surface sous les nanocubes n'est pas très planes et cela empêche l'excitation des gap-plasmons.

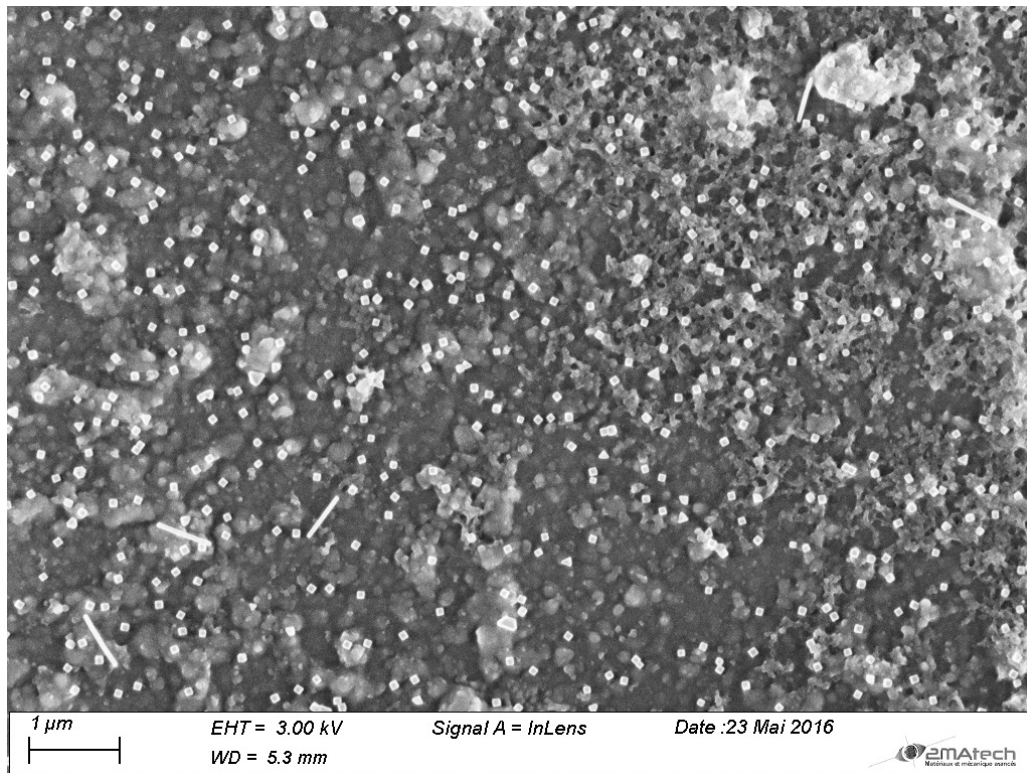


FIGURE 4.21 – Image au MEB d'un dépôt de nanocubes sur un film diélectrique lui-même déposé sur une couche métallique (grossissement : 10 000 X)

Pour trouver une explication à l'existence de tels amas, il faut regarder de plus près la création du film diélectrique. Le dépôt d'une monocouche de polymères peut être influencé par plusieurs paramètres comme énoncé dans la thèse de Jérôme Dejeu datant de 2007[87].

La masse molaire et la longueur des polymères

Le premier de ces paramètres que nous évoquerons est la masse molaire des polymères. Sur la graphique tiré de cette thèse (figure 4.22), nous pouvons remarquer que la masse molaire ne montre pas d'effet significatif sur la quantité adsorbée. Cependant, il faut savoir que des chaînes courtes (quelques dizaines de monomères) se concentrent plus rapidement sur la surface que de longues chaînes. Les chaînes très longues (plusieurs centaines de monomères) ont aussi plus de probabilité de créer des boucles c'est-à-dire des enroulements sur elles-même qui augmenteraient la quantité adsorbée mais pas le taux de remplissage de la surface. Ainsi l'utilisation de chaînes plus courtes n'influe pas sur la quantité adsorbée mais permet d'obtenir une surface plus plane avec moins de boucles. Or dans nos expériences, nous utilisons des chaînes de plus de 500 monomères. Nous pouvons aussi remarquer sur le graphique que l'adsorption se fait brutalement aux alentours de 300 secondes soit environ 5 minutes de bain. Si le temps des bains est légèrement inférieur, cela peut modifier totalement la monocouche et l'empêcher de se déposer correctement.

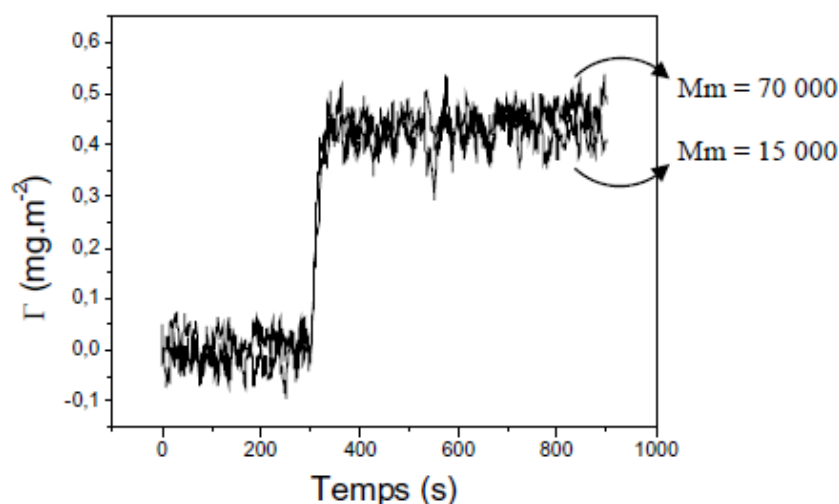


FIGURE 4.22 – Influence de la masse molaire des polymères sur la quantité adsorbée d'une monocouche de PAH (courbe tirée de la thèse de Jérôme Dejeu[87])

La concentration

Nous pouvons aussi jouer sur la concentration du PAH et du PSS dans les solutions de NaCl afin de modifier l'adsorption des polymères. En effet, sur le tableau 4.23 tiré de la même thèse, nous pouvons voir que le temps au bout duquel l'adsorption brutale se produit évolue en fonction de la concentration des solutions en polymères. Plus la concentration est grande, plus le temps qu'il faut est faible. Ainsi, si la concentration n'est pas exactement celle prévue avec le temps choisi pour les bains mais qu'elle est inférieure, l'adsorption est bien moins efficace et la monocouche s'en trouve extrêmement modifiée.

Concentration (ppm)	Temps	Concentration (ppm)	Temps (s)
0.01	15 H	2	162
0.05	2 H 18 min	3	143
0.1	1 H 21 min	4	90
0.5	24 min	5	84
1	266 s	10	47

FIGURE 4.23 – Tableau représentant l'influence de la concentration des polymères en solution (tableau tiré de la thèse de Jérôme Dejeu[87])

Dans cette dernière partie, nous avons montré qu'une transmission à travers un film métallique exaltée par les nanocubes était théoriquement possible. La problématique de l'excitation de ces résonateurs à travers un film métallique est de toutes façons pertinente parce qu'elle pourrait aussi permettre une miniaturisation des capteurs, par exemple en les déposant au bout d'une fibre optique. J'ai tenté, en m'appuyant sur les compétences et le matériel présent au laboratoire dans les différentes équipes de l'axe Photon de l'Institut Pascal, de réaliser des

structures susceptibles de mettre ce phénomène en évidence. Notre première série d'expériences a échoué : les cubes ont bien été déposés, mais leur réponse optique est inexistante, donc aucun n'a formé de résonateur. En analysant ce qui avait pu rater (puisque les cubes s'étaient quand même déposés), nous en sommes venus à la conclusion que les temps que nous avons utilisés pour la fabrication de la couche de diélectrique par une technique de Layer-By-Layer n'étaient pas adaptés. Dans un futur très proche, nous allons recommencer les expériences en espérant cette fois avoir plus de succès. D'autres méthodes de caractérisation (AFM et ellipsométrie) seront utilisées pour contrôler étape par étape la qualité de nos réalisations.

Au cours de cette thèse, nous avons tout d'abord décrit de façon théorique un résonateur à gap-plasmon à base d'antenne patch. Nous avons mis en évidence un mécanisme de contrôle interférométrique de l'absorption expliquant pourquoi certaines résonances n'étaient pas excitées en incidence normale, et pourquoi d'autres étaient particulièrement efficaces pour concentrer et absorber la lumière dans les mêmes conditions. Nous avons montré que ce mécanisme était capable d'expliquer la dépendance angulaire de la section efficace d'absorption de chaque résonateur pris individuellement et d'expliquer ainsi pourquoi elle diminuait avec l'angle pour la résonance fondamentale notamment. Ce mécanisme devrait permettre à l'avenir de mieux comprendre comment varie la réflectivité d'une assemblée de ces résonateurs, car leur densité peut compliquer l'image simple qu'on pourrait en avoir. Il montre aussi comment on peut utiliser l'angle d'incidence pour faire en sorte que les nano-antennes concentrent plus ou moins la lumière. Inversement, peut-être pourrait-on utiliser ce mécanisme pour mieux expliquer le diagramme d'émission des cubes, en apparence assez semblable à celui d'un dipôle et surtout, avec un lobe orienté perpendiculairement au film métallique.

En implémentant une technique numérique qui a été initialement développée dans l'équipe qui m'a accueillie, j'ai pu montrer qu'elle permettait de calculer les paramètres cruciaux du modèle utilisé pour comprendre les résonateurs - et même qu'elle était nécessaire. En plasmonique, des problèmes numériques complexes ont tendance à surgir souvent, et cette méthode a permis d'en contourner quelques uns dans des conditions de rapports de forme pourtant assez extrêmes. Elle permet ainsi d'accélérer la convergence des méthodes modales grâce à l'utilisation d'étirement de coordonnées et permet l'utilisation de techniques pour casser la périodicité intrinsèque de la méthode. J'ai aussi eu la chance de participer au développement de Moosh, un programme de résolution des équations de Maxwell pour des structures multi-couches.

Nous savons que les nanopatches sont de très bons absorbeurs et émetteurs mais ils doivent d'après nos simulations aussi pouvoir aider à transmettre la lumière plus facilement à travers un film métallique. Nous avons mis en évidence que des profils de Fano pouvaient se manifester, et qu'ainsi près des résonances, les nanopatches pouvaient favoriser la transmission à travers le substrat en métal. Après cette étude théorique menée grâce aux codes que j'avais mis au point, j'ai eu la chance de pouvoir débiter des activités expérimentales, une première dans l'équipe. Les structures étant théoriquement simple et peu onéreuses à fabriquer, j'ai travaillé avec plusieurs équipes et différents techniciens sur les étapes menant à la réalisation de surfaces décorées de nanocubes. Les échantillons que nous avons réalisés ne se sont pas révélés fonctionnels. Nous pensons cependant avoir identifié la source du problème. Nous espérons vivement que dans les semaines ou mois à venir, nous serons en mesure de produire un dispositif qui mette les

phénomènes attendus en évidence.

Ces thématiques devraient connaître des développements encore plus poussés à l'avenir, puisqu'un projet visant à utiliser ces nano-résonateurs pour extraire la lumière de couches lumineuses a été déposé. Les outils que j'ai développés et le savoir-faire que j'ai permis au laboratoire d'acquérir devraient être très utiles à l'avenir dans cette voie.

- [1] S. Bozhevolny and T. Sondergaard, “General properties of slow-plasmon resonant nanostructures : nano-antennas and resonators,” *Optics Express*, vol. 15, p. 10869, Août 2007.
- [2] G. M. Akselrod, C. Argyropoulos, T. B. Hoang, C. Ciraci, C. Fang, J. Huang, D. R. Smith, and M. H. Mikkelsen, “Probing the mechanisms of large purcell enhancement in plasmonic nanoantennas,” *Nature Photonics*, vol. 8, pp. 835–840, 2014.
- [3] E. Ozbay, “Plasmonics : merging photonics and electronics at nanoscale dimensions,” *Science*, vol. 311, pp. 189–192, 2006.
- [4] R. W. Wood, “On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum,” *Philosophical Magazine*, vol. 4, pp. 396–402, 1902.
- [5] L. Rayleigh, “Note on the remarkable case of diffraction spectra described by prof. wood,” *Philosophical Magazine*, vol. 14, pp. 60–65, 1907.
- [6] R. W. Wood, “On the dynamical theory of gratings,” *Proceedings of the Royal Society*, vol. 79, pp. 399–416, 1907.
- [7] J. Strong, “Effect of evaporated films on energy distribution in grating spectra,” *Physical Review*, vol. 49, pp. 291–296, 1936.
- [8] R. W. Wood, “Anomalous diffraction gratings,” *Physical Review*, vol. 48, pp. 928–936, 1935.
- [9] C. H. Palmer Jr., “Parallel diffraction grating anomalies,” *Journal of Optical Society of America*, vol. 42, pp. 269–276, 1952.
- [10] C. H. Palmer Jr., “Diffraction grating anomalies, ii, coarse gratings,” *Journal of Optical Society of America*, vol. 46, pp. 50–53, 1956.
- [11] U. Fano, “The theory of anomalous diffraction gratingd and of quasi-stationary waves on metallic surfaces (sommerfield’s waves),” *Journal of Optical Society of America*, vol. 31, pp. 213–222, 1941.
- [12] D. Pines, “Collective energy losses in solids,” *Review of Modern Physics*, vol. 28, p. 184, 1956.
- [13] A. Hessel and A. A. Oliner, “A new theory of wood’s anomalies on optical gratings,” *Applied Optics*, vol. 4, pp. 1275–1297, 1965.
- [14] D. Maystre, *Plasmonics*, vol. 167. Springer Berlin Heidelberg, 2012.
- [15] D. Maystre, “Sur la diffraction d’une onde plane par un réseau métallique de conductivité finie,” *Optics Communication*, vol. 6, pp. 50–54, 1972.
- [16] D. Maystre, “Sur la diffraction d’une onde plane électromagnétique par un réseau métallique,” *Optics Communication*, vol. 8, pp. 216–219, 1973.

- [17] M. Nevière, R. Petit, and M. Cadilhac, “About the theory of optical grating coupler-waveguide systems,” *Optics Communication*, vol. 8, p. 113, 1973.
- [18] M. Nevière, P. Vincent, R. Petit, and M. Cadilhac, “Systematic study of resonances of holographic thin film couplers,” *Optics Communication*, vol. 9, p. 48, 1973.
- [19] R. H. Ritchie, “Plasma losses by fast electrons in thin films,” *Physical Review*, vol. 106, pp. 871–881, 1957.
- [20] P. Drude, “Zur elektronentheorie des metalle,” *Annalen der Physik*, vol. 306, pp. 566–613, 1900.
- [21] H. Liu and P. Lalanne, “Microscopic theory of the extraordinary optical transmission,” *Nature*, vol. 452, no. 7188, pp. 728–731, 2008.
- [22] J. Homola, S. S. Yee, and G. Gauglitz, “Surface plasmon resonance sensors : review,” *Sensors and Actuators B : Chemical*, vol. 54, pp. 3–15, 1999.
- [23] M. Faraday, “The bakerian lecture : experimental relations of gold (and other metals) to light,” *Philosophical Transactions Royal Society of London*, vol. 147, pp. 145–181, 1857.
- [24] G. Mie, “Beiträge zur optik trüber medien, speziell kolloidaler metallösunger,” *Annalen der Physik*, vol. 330, pp. 377–445, 1908.
- [25] H. Fröhlich, “General theory of the static dielectric constant,” *Transactions of the Faraday Society*, vol. 44, pp. 238–243, 1948.
- [26] J. Haes, Amanda and R. P. Van Duyne, “A nanoscale optical biosensor : sensitivity and selectivity of an approach based on the localized surface plasmon resonance spectroscopy of triangular silver nanoparticles,” *Journal of the American Chemical Society*, vol. 124, pp. 10596–10604, 2002.
- [27] X. Luo, A. Morrin, A. J. Killiard, and M. R. Smyth, “Application of nanoparticles in electrochemical sensors and biosensors,” *Electroanalysis*, vol. 18, pp. 319–326, 2006.
- [28] O. Neumann, D. Neumann, Albert, E. Silva, C. Ayala-Orozco, S. Tian, P. Nordlander, and N. J. Halas, “Nanoparticle-mediated, light-induced phase separations,” *Nano Letters*, vol. 15, pp. 7880–7885, 2015.
- [29] O. Neumann, A. S. Urban, J. Day, S. Lal, P. Nordlander, and N. J. Halas, “Solar vapor generation enabled by nanoparticles,” *ACS Nano*, vol. 7, pp. 42–49, 2013.
- [30] C. Loo, A. Lowery, N. J. Halas, J. West, and R. Drezek, “Immunotargeted nanoshells for integrated cancer imaging and therapy,” *Nano Letters*, vol. 5, pp. 709–711, 2005.
- [31] Q. Min, C. Chen, P. Berini, and R. Gordon, “Long range surface plasmons on asymmetric suspended thin film structures for biosensing applications,” *Optics Express*, vol. 18, pp. 19009–19019, 2010.
- [32] Y. Liu, S. Xu, X. Xuyang, B. Zhao, and W. Xu, “Long-range surface plasmon field-enhanced raman scattering spectroscopy based on evanescent field excitation,” *The Journal of Physical Chemistry Letters*, vol. 2, pp. 2218–2222, 2011.
- [33] P. Berini, “Plasmon-polariton modes guided by a metal film of finite width,” *Optics Letters*, vol. 24, pp. 1011–1013, 1999.
- [34] P. Berini, “Plasmon-polariton waves guided by thin lossy metal films of finite width : bound modes of asymmetric structures,” *Physical Review B*, vol. 63, pp. 125417–125432, 2001.
- [35] P. Berini and I. De Leon, “Surface plasmon-polariton amplifiers and lasers,” *Nature Photonics*, vol. 6, pp. 16–24, 2012.
- [36] S. I. Bozhevolnyi, V. S. Volkov, E. Devaux, J.-Y. Laluet, and T. W. Ebbesen, “Channel plasmon subwavelength waveguide components including interferometers and ring resonators,” *Nature*, vol. 440, pp. 508–511, 2006.

- [37] A. W. Sanders, D. A. Routenberg, B. J. Wiley, Y. Xia, E. R. Dufresne, and M. A. Reed, “Observation of plasmon propagation, redirection, and fan-out in silver nanowires,” *Nano Letters*, vol. 6, pp. 1822–1826, 2006.
- [38] H. Ditlbacher, A. Hohenau, D. Wagner, U. Kreibig, M. Rogers, F. Hofer, F. R. Aussenegg, and J. R. Krenn, “Silver nanowires as surface plasmon resonators,” *Physical Review Letters*, vol. 95, p. 257403, 2005.
- [39] W. Cai, W. Shin, S. Fan, and M. L. Brongersma, “Elements for plasmonic nanocircuits with three-dimensional slot waveguides,” *Advanced Materials*, vol. 22, pp. 5120–5124, 2010.
- [40] J. Yang, C. Sauvan, A. Jouanin, S. Collin, J.-L. Pelouard, and P. Lalanne, “Ultras-small metal-insulator-metal nanoresonators : impact of slow-wave effects on the quality factor,” *Optics Express*, vol. 20, pp. 16880–16891, 2012.
- [41] A. Moreau, C. Ciraci, J. J. Mock, R. T. Hill, Q. Wang, B. J. Wiley, A. Chilkoti, and D. R. Smith, “Controlled-reflectance surfaces with film-coupled colloidal nanoantennas,” *Nature*, vol. 492, pp. 86–89, Décembre 2012.
- [42] J. B. Lassiter, X. Chen, X. Liu, C. Ciraci, T. B. Hoang, S. Larouche, S.-H. Oh, M. H. Mikkelsen, and D. R. Smith, “Third-harmonic generation enhancement by film-coupled plasmonic stripe resonators,” *Acs Photonics*, vol. 1, pp. 1212–1217, 2014.
- [43] A. Moreau, C. Ciraci, and D. R. Smith, “Impact of nonlocal response on metallodielectric multilayers and optical patch antennas,” *Physical Review B*, vol. 87, p. 045401, 2013.
- [44] M. Dechaux, P.-H. Tichit, C. Ciraci, J. Benedicto, R. Pollès, E. Centeno, D. R. Smith, and A. Moreau, “Influence of spatial dispersion in metals on the optical response of deeply subwavelength slit arrays,” *Physical Review B*, vol. 93, p. 045413, 2016.
- [45] A. Tittl, P. Mai, R. Taubert, D. Dregely, N. Liu, and H. Giessen, “Palladium-based plasmonic perfect absorber in the visible wavelength range and its application to hydrogen sensing,” *Nano Letters*, vol. 11, pp. 4366–4369, 2011.
- [46] A. Cattoni, P. Ghenuche, A.-M. Haghiri-Gosnet, D. Decanini, J. Chen, J.-L. Pelouard, and S. Collin, “ $\lambda/1000$ plasmonic nanocavities for biosensing fabricated by soft uv nanoimprint lithography,” *Nano Letters*, vol. 11, pp. 3557–3563, 2011.
- [47] A. W. Powell, D. M. Coles, R. A. Taylor, A. A. Watt, H. E. Assender, and J. M. Smith, “Plasmonic gas sensing using nanocube patch antennas,” *Advanced Optical Materials*, 2016.
- [48] G. M. Akselrod, J. Huang, T. B. Hoang, P. T. Bowen, L. Su, D. R. Smith, and M. H. Mikkelsen, “Large-area metasurface perfect absorbers from visible to near-infrared,” *Advanced Materials*, vol. 27, no. 48, pp. 8028–8034, 2015.
- [49] A. Pors, O. Albrektsen, I. P. Radko, and S. I. Bozhevolnyi, “Gap plasmon-based metasurfaces for total control of reflected light,” *Scientific Reports*, vol. 3, 2013.
- [50] P. Mühlischlegel, H.-J. Eisler, O. J. F. Martin, B. Hecht, and D. Pohl, “Resonant optical antennas,” *Science*, vol. 308, pp. 1607–1609, 2005.
- [51] T. B. Hoang, G. M. Akselrod, C. Argyropoulos, J. Huang, D. R. Smith, and M. H. Mikkelsen, “Ultrafast spontaneous emission source using plasmonic nanoantennas,” *Nature Communications*, vol. 6, p. 7788, 2015.
- [52] C. Belacel, B. Habert, F. Bigourdan, F. Marquier, J.-P. Hugonin, S. Michaelis de Vasconcelos, X. Lafosse, L. Coolen, C. Schwob, C. Javaux, *et al.*, “Controlling spontaneous emission with plasmonic optical patch antennas,” *Nano Letters*, vol. 13, no. 4, pp. 1516–1521, 2013.
- [53] R. Faggiani, J. Yang, and P. Lalanne, “Quenching, plasmonic, and radiative decays in nanogap emitting devices,” *ACS Photonics*, vol. 2, no. 12, pp. 1739–1744, 2015.

- [54] N. Yu, P. Genevet, M. A. Kats, F. Aieta, J.-P. Tetienne, F. Capasso, and Z. Gaburro, “Light propagation with phase discontinuities : generalized laws of reflection and refraction,” *Science*, vol. 334, pp. 333–337, 2011.
- [55] S. Larouche, Y.-J. Tsai, T. Tyler, N. M. Jokerst, and D. R. Smith, “Infrared metamaterial phase holograms,” *Nature Materials*, vol. 11, pp. 450–454, 2012.
- [56] C. Cirací, J. B. Lassiter, A. Moreau, and D. R. Smith, “Quasi-analytic study of scattering from optical plasmonic patch antennas,” *Journal of Applied Physics*, vol. 114, p. 163108, 2013.
- [57] P. T. Bowen and D. R. Smith, “Coupled-mode theory for film-coupled plasmonic nanocubes,” *Physical Review B*, vol. 90, p. 195402, 2014.
- [58] J. Defrance, C. Lemaître, R. Ajib, J. Benedicto, E. Mallet, R. Pollès, J.-P. Plumey, M. Mihailovic, E. Centeno, C. Cirací, D. R. Smith, and A. Moreau, “Moosh : A numerical swiss army knife for the optics of multilayers in octave/matlab,” *Journal of Open Research Software*, vol. 4, p. 13, 2016.
- [59] C. Lemaître, E. Mallet, M. Mihailovic, A. Moreau, P.-H. Tichit, R. Pollès, and V. Morénas, “Moosh : un couteau suisse numérique pour l’optique ondulatoire,” *Bulletin de l’Union des Physiciens*, vol. soumis - en attente de publication, 2016.
- [60] J. C. Maxwell, “A dynamical theory of the electromagnetic field,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, vol. 155, pp. 459–512, 1865.
- [61] S. Larouche and L. Martinu, “Openfilters : open-source software for the design, optimization, and synthesis of optical filters,” *Applied Optics*, vol. 47, pp. C219–C230, 2008.
- [62] F. Krayzel, R. Pollès, A. Moreau, M. Mihailovic, and G. Granet, “Simulation and analysis of exotic non-specular phenomena,” *Journal of the European Optical Society - Rapid publications*, vol. 5, p. 10025, 2010.
- [63] J. Benedicto, R. Pollès, C. Cirací, E. Centeno, D. R. Smith, and A. Moreau, “Numerical tool to take nonlocal effects into account in metallo-dielectric multilayers,” *Journal of the Optical Society of America*, vol. 32, pp. 1581–1588, 2015.
- [64] M. G. Moharam and T. K. Gaylord, “Rigorous coupled-wave analysis of planar-grating diffraction,” *Journal of the Optical Society of America A*, vol. 71, pp. 811–818, 1981.
- [65] P. Lalanne and G. M. Morris, “Highly improved convergence of the coupled-wave method for tm polarization,” *Journal of the Optical Society of America A*, vol. 13, pp. 779–784, 1996.
- [66] G. Granet and B. Guizal, “Efficient implementation of the coupled-wave method for metallic lamellar gratings in tm polarization,” *Journal of the Optical Society of America A*, vol. 13, pp. 1019–1023, 1996.
- [67] L. Li, “Use of fourier series in the analysis of discontinuous periodic structures,” *Journal of the Optical Society of America A*, vol. 13, pp. 1870–1876, 1996.
- [68] L. Li, “Formulation and comparison of two recursive matrix algorithms for modeling layered diffraction gratings,” *Journal of the Optical Society of America A*, vol. 13, pp. 1024–1035, 1996.
- [69] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics*. Harcourt, 1976.
- [70] G. Granet, “Reformulation of the lamellar grating problem through the concept of adaptive spatial resolution,” *Journal of the Optical Society of America A*, vol. 16, pp. 2510–2516, 1999.
- [71] G. Granet and J.-P. Plumey, “Parametric formulation of the fourier modal method for crossed surface-relief gratings,” *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics*, vol. 4, p. S145, 2002.

- [72] J. Chandezon, M. T. Dupuis, G. Cornet, and D. Maystre, "Multicoated gratings - a differential formalism applicable to the entire optical region," *Journal of the Optical Society of America A*, vol. 72, pp. 839–846, 1982.
- [73] J. B. Pendry, D. Schurig, and D. R. Smith, "Controlling electromagnetic fields," *Science*, vol. 312, pp. 1780–1782, 2006.
- [74] J. P. Berenger, "A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves," *Journal of Computational Physics*, vol. 114, pp. 185–200, 1994.
- [75] W. C. Chew and W. H. Weedon, "A 3d perfectly matched medium for modified maxwell's equations with stretched coordinates," *Microwave and Optical Technology Letters*, vol. 7, pp. 599–604, 1994.
- [76] W. C. Chew, J. M. Jin, and E. Michielssen, "Complex coordinate stretching as a generalized absorbing boundary condition," *Microwave and Optical Technology Letters*, vol. 15, pp. 363–369, 1997.
- [77] D. S. Katz, E. T. Thiele, and A. Taflove, "Validation and extension to three dimensions of the berenger pml absorbing boundary condition for fd-td meshes," *IEEE Microwave Guided Wave Letters*, vol. 4, pp. 268–270, 1994.
- [78] C. Ciraci, R. Hill, J. Mock, Y. Urzhumov, A. Fernández-Domínguez, S. Maier, J. Pendry, A. Chilkoti, and D. Smith, "Probing the ultimate limits of plasmonic enhancement," *Science*, vol. 337, no. 6098, pp. 1072–1074, 2012.
- [79] C. M. Watts, X. Liu, and W. J. Padilla, "Metamaterial electromagnetic wave absorbers," *Advanced Materials*, vol. 24, no. 23, 2012.
- [80] W. Wan, Y. Chong, L. Ge, H. Noh, A. D. Stone, and H. Cao, "Time-reversed lasing and interferometric control of absorption," *Science*, vol. 331, no. 6019, pp. 889–892, 2011.
- [81] T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemil, T. Thiol, and P. A. Wolff, "Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays," *Nature*, vol. 391, pp. 667–669, 1998.
- [82] J. Porto, F. Garcia-Vidal, and J. Pendry, "Transmission resonances on metallic gratings with very narrow slits," *Physical Review Letters*, vol. 83, p. 2845, 1999.
- [83] U. Fano, "Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts," *Physical Review*, vol. 124, pp. 1866–1878, 1961.
- [84] K. M. G. Siegbahn, "Electron spectroscopy for atoms, molecules and condensed matter," *Nobel Lecture*, 1981.
- [85] J. J. Richardson, M. Björnmalm, and F. Caruso, "Technology-driven layer-by-layer assembly of nanofilms," *Science*, vol. 348, pp. 411–423, 2015.
- [86] Y. Sun and Y. Xia, "Shape-controlled synthesis of gold and silver nanoparticles," *Science*, vol. 298, pp. 2176–2179, Décembre 2002.
- [87] J. Dejeu, "Films de deux polymères auto-assemblés : chlorydrate de polyallylamine (pah) et polystyrène sulfonate de sodium (pss) ; mécanique de croissance et stabilité," 2007.

Résumé

Dans le domaine des biocapteurs, une absorption efficace du champ électromagnétique dans un espace restreint est essentielle. L'utilisation de nanoparticules métalliques assimilables à des métamatériaux est le meilleur moyen à ce jour pour amplifier le champ. En effet, en plaçant un film diélectrique entre une plaque métallique et ces particules, on permet la propagation d'un gap-plasmon sous les particules. Cela localise le champ magnétique sous les particules et le champ électrique sur les bords de ces nanoparticules. Les résonances de ce système sont très sensibles à l'environnement du gap-plasmon ce qui permet une analyse très précise.

Bien que nous pouvons expliquer d'où proviennent ces résonances, l'efficacité à absorber de ces structures reste encore mal comprise. Le contrôle interférométrique est une réponse à cette efficacité. Dans ce rapport, je montre qu'une modélisation interférométrique de ce système peut parfaitement expliquer l'absorption. En effet, le contrôle interférométrique explique bien la présence de résonances à des longueurs d'ondes précises ou encore l'apparition de résonances lorsque l'angle d'incidence n'est plus normal. Cette étude est très importante pour comprendre et mieux maîtriser les biocapteurs. En outre, cette modélisation pourra expliquer l'amplification du champ dans ces structures et permettra de prévoir les résonances d'un système dans divers environnements.

Abstract

In the field of biosensors, efficient absorption of the electromagnetic field in a confined space is essential. The use of metallic nanoparticles comparable to metamaterials is the best way, to date, to amplify the field. In fact, by placing a dielectric film between a metal substrate and these particles, we allow the propagation of a gap-plasmon under these particles. This locates the magnetic field under these particles and the electric field on the edges of these nanoparticles. The resonances of this system are very sensitive to the environment of the gap-plasmon which allows very precise analysis.

Although we can explain where these resonances come from, the efficiency to absorb of these structures remains poorly understood. The interferometric control is a response to this efficiency. In this report, I show that interferometric modeling of this system can fully explain the absorption. Indeed, the interferometric control well explains the presence of resonances at specific wavelenghts or the appearance of resonances when the angle of incidence is not normal. This study is very important to understand and master biosensors. In addition, this model can explain the amplification of the field in these structures and will allow us to provide the resonances of a system in various environments.