



**HAL**  
open science

# Caractérisation de la chiralité optique dans des systèmes plasmoniques

Kim Anh Aline Pham

► **To cite this version:**

Kim Anh Aline Pham. Caractérisation de la chiralité optique dans des systèmes plasmoniques. Matière Condensée [cond-mat]. Université Grenoble Alpes, 2018. Français. NNT: 2018GREAY051 . tel-02052634

**HAL Id: tel-02052634**

**<https://theses.hal.science/tel-02052634>**

Submitted on 28 Feb 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.

## **THÈSE**

Pour obtenir le grade de

### **DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE GRENOBLE ALPES**

Spécialité : **PHYSIQUE / NANOPHYSIQUE**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

**Kim Anh, Aline PHAM**

Thèse dirigée par **Aurélien DREZET**, Chargé de recherche,  
**Institut Néel (CNRS)** et  
codirigée par **Cyriaque Genet**, Directeur de recherche, Institut  
de Science et d'Ingénierie Supramoléculaires

préparée au sein de l'**Institut Néel (CNRS)**  
dans l'**École Doctorale de Physique de Grenoble**

## **Caractérisation de la chiralité optique dans des systèmes plasmoniques**

Thèse soutenue publiquement le **mardi 6 novembre 2018**,  
devant le jury composé de :

**Pr. Alain DEREUX**

Professeur, Institut Carnot de Bourgogne à Dijon, Président du Jury

**Pr. Renaud BACHELOT**

Professeur, Institut Charles Delaunay à Troyes, Rapporteur

**Dr. Jérôme WENGER**

Chargé de recherche, Institut Fresnel à Marseille, Rapporteur

**Dr. Aurélien CUCHE**

Chargé de Recherche, CEMES à Toulouse, Examineur

**Pr. David FERRAND**

Professeur, Institut Néel à Grenoble, Examineur





# Remerciements

Je tiens à remercier toutes les personnes qui m'ont permis de mener à bien ce projet de thèse à l'Institut Néel (CNRS). Je remercie le directeur Etienne Bustarret pour son accueil au sein du laboratoire.

Je souhaite remercier les membres du jury pour l'intérêt accordé à mon projet de recherche : Renaud Bachelot et Jérôme Wenger pour avoir accepté d'en être les rapporteurs, Aurélien Cuche et David Ferrand pour leur participation en tant qu'examineurs et Alain Dereux pour la présidence du jury.

Je tiens particulièrement à exprimer ma gratitude envers mon directeur de thèse Aurélien Drezet et co-encadrant de thèse Cyriaque Genet, pour leur encadrement durant ce projet. Je suis infiniment reconnaissante à Aurélien qui m'a donné l'opportunité d'entreprendre un doctorat et pour m'avoir confié ce travail de recherche. Je le remercie pour son accompagnement scientifique et théorique, sa disponibilité et sans oublier son enthousiasme qui m'ont été essentiels durant cette thèse. Je remercie Cyriaque Genet pour m'avoir aiguillé sur des pistes de recherche stimulantes et nos discussions scientifiques fructueuses.

Je tiens également à remercier l'ensemble de l'équipe Nanofab pour leur aide en salle blanche durant la fabrication des échantillons. En particulier, je remercie Jean-François Motte et Gwenaëlle Julie pour la gravure des échantillons, pour la réalisation des images MEB et l'élaboration des pointes optiques SNOM. Je remercie aussi Géraldine Dantelle pour l'élaboration des nanodiamants. Je souhaite remercier les membres de l'équipe Nano-Optique et Forces. En particulier, je souhaite remercier Serge Huant pour la relecture de mes articles et Guillaume Bachelier pour ses qualités de pédagogue dont j'ai pu bénéficier. Je remercie l'ensemble du personnel administratif et financier de l'Institut Néel.

Je remercie également mes compagnons de thèse de l'Institut Néel de m'avoir accompagné durant ces trois années de thèse et avec qui je garderai de très bons souvenirs philosophiques, sportifs, culinaires et oenologiques : Lorenzo, Maeliss, Beatrix, Nicolas, Guillaume et Airong. Plus particulièrement, j'aimerais remercier mes prédécesseurs au sein de l'équipe : Martin Berthel pour m'avoir transmis son savoir-faire sur le SNOM, Quanbo Jiang pour notre collaboration sur les nano-hammers et pour m'avoir formé sur la conception et la fabrication des échantillons.

Enfin, j'adresse mes remerciements à Zoltan pour son soutien indéfectible.



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>7</b>
<b>Liste de publications</b>	<b>11</b>
<b>1 Les plasmons de surface</b>	<b>13</b>
1.1 Introduction . . . . .	13
1.2 Conditions d'existence des plasmons de surface . . . . .	14
1.2.1 Le champ proche optique . . . . .	15
1.2.2 Modes transverses magnétiques . . . . .	17
1.3 Propriétés optiques des plasmons de surface . . . . .	19
1.3.1 Relation de dispersion . . . . .	19
1.3.2 Propagation des plasmons de surface . . . . .	19
1.3.3 Distance de propagation . . . . .	22
1.3.4 Confinement transversal . . . . .	22
1.4 Couplage photons-plasmons de surface . . . . .	23
1.4.1 Relation d'accord de phase . . . . .	23
1.4.2 Couplage par réseau de diffraction . . . . .	24
1.4.3 Double interfaces : couplage par prisme et microscopie à fuites radiatives . . . . .	25
1.4.4 Microscopie champ proche optique . . . . .	28
1.5 Conclusion . . . . .	30
<b>2 Le couplage spin-orbite de la lumière</b>	<b>31</b>
2.1 Introduction . . . . .	31
2.2 Notions d'interaction spin-orbite optique . . . . .	32
2.2.1 Moment angulaire de spin . . . . .	32
2.2.2 Moment angulaire orbital . . . . .	32
2.2.3 Effet spin Hall optique . . . . .	34
2.3 Excitation unidirectionnelle des plasmons de surface . . . . .	36
2.3.1 Contrôle unidirectionnel plasmonique . . . . .	37
2.3.2 Contrôle radial des plasmons de surface . . . . .	40
2.4 Conclusion . . . . .	41
<b>3 Techniques expérimentales</b>	<b>43</b>
3.1 Introduction . . . . .	43
3.2 Fabrication des échantillons . . . . .	44
3.2.1 Dépôt de couches minces métalliques . . . . .	44

3.2.2	Gravure par FIB . . . . .	45
3.3	Montage 1 : Excitation plasmonique en champ lointain . . . . .	46
3.3.1	Description du dispositif . . . . .	46
3.3.2	Système d'imagerie . . . . .	47
3.4	Tomographie en polarisation : formalismes de Jones et Mueller . . . . .	50
3.4.1	Vecteurs et matrices de Jones . . . . .	50
3.4.2	Vecteur de Stokes et matrice de Mueller . . . . .	52
3.4.3	Matrice de Mueller-Jones . . . . .	53
3.5	Montage 2 : Le champ proche optique pour l'excitation des plasmons de surface . . . . .	54
3.5.1	Régulation de la distance sonde-échantillon . . . . .	54
3.5.2	Système d'imagerie . . . . .	56
3.5.3	Fabrication des sondes locales optiques . . . . .	62
3.6	Conclusion . . . . .	68
<b>4</b>	<b>Chiralité optique mixte 2D et 3D dans les systèmes plasmoniques</b>	<b>69</b>
4.1	Introduction . . . . .	69
4.2	Matrices de Jones chirales . . . . .	71
4.2.1	Condition de chiralité optique . . . . .	71
4.2.2	Critères de chiralité optique 3D . . . . .	72
4.2.3	Critères de chiralité 2D . . . . .	74
4.3	Réponse en polarisation d'une nano-ouverture rectangulaire . . . . .	76
4.3.1	Ellipses de polarisation . . . . .	76
4.3.2	Matrice de Jones chirales . . . . .	77
4.3.3	Contribution du dipôle $\mathbf{p}^{\parallel}$ . . . . .	79
4.4	Modèle théorique dipolaire d'un $\Lambda$ idéal . . . . .	80
4.4.1	Modélisation . . . . .	80
4.4.2	Simulations . . . . .	81
4.5	Chiralité mixte 2D et 3D . . . . .	82
4.5.1	Défauts structuraux planaires et volumiques . . . . .	83
4.5.2	Réduction des défauts d'asymétrie . . . . .	85
4.6	Description de la chiralité mixte par le modèle microscopique de Kuhn	87
4.7	Conclusion . . . . .	90
<b>5</b>	<b>Plateforme plasmonique de brouillage d'interférence</b>	<b>91</b>
5.1	Introduction . . . . .	91
5.2	Mécanisme de SHEL réciproque : Démonstration d'un polariseur cir- culaire plasmonique . . . . .	93
5.2.1	Protocole expérimental . . . . .	93
5.2.2	Résultats : Découplage en polarisation circulaire . . . . .	95
5.3	Dispositif plasmonique de brouillage d'interférence . . . . .	98
5.3.1	Discernabilité des plasmons . . . . .	99
5.3.2	Plasmons indiscernables . . . . .	100
5.3.3	Expérience classique de la "gomme quantique" . . . . .	100
5.4	Conclusion . . . . .	101

<b>6</b>	<b>Lentilles de vortex plasmoniques</b>	<b>103</b>
6.1	Introduction . . . . .	103
6.2	Génération de vortex plasmoniques à partir de cavités spirales . . . . .	105
6.2.1	Protocole expérimental . . . . .	105
6.2.2	Analyse théorique . . . . .	106
6.2.3	Résultats expérimentaux . . . . .	107
6.3	"Métaspirales" : des lentilles convergentes de vortex plasmoniques . . . . .	114
6.3.1	Analyse théorique . . . . .	115
6.3.2	Résultats expérimentaux . . . . .	116
6.4	Conclusion et perspectives . . . . .	122
<b>A</b>	<b>Profils d'intensité des PVL chirales</b>	<b>125</b>
<b>B</b>	<b>Métaspirales pour un faisceau plasmonique divergeant</b>	<b>129</b>
<b>C</b>	<b>Génération de vortex plasmoniques par des métaspirales <math> m  = 1</math></b>	<b>133</b>
<b>7</b>	<b>LDOS optique chirale dans des cavités plasmoniques spirales</b>	<b>137</b>
7.1	Introduction . . . . .	137
7.2	Concept de densité locale d'états optique . . . . .	139
7.2.1	Notion de LDOS . . . . .	139
7.2.2	Techniques optiques pour la mesure de la LDOS . . . . .	141
7.3	Description de l'expérience . . . . .	143
7.4	Mesure de la LDOS partielle planaire $\delta\rho_{\parallel}$ . . . . .	147
7.4.1	Orientation du dipôle source . . . . .	147
7.4.2	Cavité plasmonique chirale . . . . .	148
7.4.3	Cavité plasmonique circulaire . . . . .	152
7.5	Mesure de la LDOS partielle normale $\delta\rho_{\perp}$ . . . . .	154
7.5.1	Caractérisation de la sonde active . . . . .	154
7.5.2	Cartographie de la LDOS partielle . . . . .	155
7.6	Analyse polarimétrique de la LDOS partielle . . . . .	157
7.6.1	Diagramme de polarisation LDOS . . . . .	158
7.6.2	Polarisation locale de LDOS . . . . .	161
7.7	Densité et flux de chiralité de LDOS . . . . .	162
7.7.1	Notion de densité et de flux de chiralité . . . . .	163
7.7.2	Mesure de la chiralité en champ lointain . . . . .	163
7.7.3	Chiralité en champ proche . . . . .	165
7.7.4	Onde plasmonique planaire rétro-réfléchi sur la source dipolaire	168
7.8	Conclusion et perspectives . . . . .	170
<b>D</b>	<b>Complément d'analyse sur la cavité plasmonique circulaire</b>	<b>173</b>
<b>E</b>	<b>Complément d'analyse sur la cavité plasmonique spirale <math>m=+1</math></b>	<b>175</b>
	<b>Conclusion</b>	<b>177</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>179</b>





# Introduction générale

La chiralité est une propriété géométrique caractérisant les systèmes qui ne peuvent pas coïncider avec leurs images miroirs par simple rotation ou translation. Dans le monde vivant, une multitude de molécules biologiques sont chirales comme les molécules d'ADN ou encore les acides aminés, briques élémentaires des protéines. Les deux formes jumelles, appelées énantiomères sont de même composition chimique mais une seule existe à l'état naturel. La séparation des molécules chirales est un enjeu de taille car chaque énantiomère peut impliquer des mécanismes biologiques distincts. Par exemple, l'éthambutol est un traitement pour lutter contre la tuberculose alors que son énantiomère peut rendre aveugle. Bien que ces molécules soient composées des mêmes atomes, leurs arrangements peuvent conduire à des propriétés biologiques radicalement différentes. Il est donc crucial de pouvoir détecter et séparer deux énantiomères. Pour cela les scientifiques exploitent le fait que les milieux chiraux interagissent de manière différente avec d'autres systèmes chiraux. La lumière polarisée circulairement est un exemple de système de chiral permettant de différencier les milieux chiraux.

Historiquement, le phénomène de pouvoir rotatoire a été découvert par F. Arago (1811) qui observa une rotation de la polarisation linéaire de la lumière après la traversée d'une lame de quartz. En 1895, A. Cotton démontra que l'absorption par un milieu chiral était différente pour une lumière de polarisation circulaire droite ou gauche. Ce phénomène est appelé dichroïsme circulaire. Le pouvoir rotatoire et le dichroïsme circulaire sont deux caractéristiques propres aux molécules chirales que l'on réunit généralement sous le nom d'activité optique. Ce sont les travaux de L. Pasteur (1848) sur les sels de tartrate qui ont permis d'établir la structure géométrique des molécules comme l'origine de l'activité optique. Cette spécificité géométrique est définie par L. Kelvin telle que : "J'appelle chiral toute figure géométrique ou tout ensemble de points qui n'est pas superposable à son image dans un miroir. Je parle alors de chiralité." [1, 2].

Depuis ces travaux historiques, de nombreuses techniques exploitent ces phénomènes d'activité optique pour analyser et synthétiser des molécules chirales. Toutefois, la réponse optique des molécules chirales, aussi appelée "effet chiroptique", est généralement très faible à l'état naturel. La raison réside dans le fait que l'arrangement chiral des molécules se produit sur une distance beaucoup plus petite que le pas hélicoïdal de la lumière polarisée circulairement.

Afin d'augmenter ces effets, plusieurs groupes de recherche se sont consacrés à dé-

velopper des nanomatériaux plasmoniques chiraux et ont notamment rapporté des réponses chiroptiques plus importantes que celles observées dans les molécules chirales ordinaires. Ces propriétés spécifiques trouvent leur origine dans les plasmons de surface, c'est à dire des oscillations d'électrons libres dans les métaux, couplées avec le champ électromagnétique de la lumière. Ils ont la particularité de pouvoir concentrer la lumière à la surface des nanostructures, dans des volumes sub-longueurs d'onde, permettant ainsi de fortes interactions entre la lumière et la matière. Les progrès importants réalisés dans le domaine de la nanofabrication ont par ailleurs permis de créer des systèmes plasmoniques complexes pour la manipulation des différents degrés de liberté de la lumière à l'échelle nanométrique. Dans ce régime, les différents moments angulaires de la lumière interagissent fortement entre eux par l'intermédiaire du couplage spin-orbite. En particulier, la chiralité liée à la polarisation circulaire a été intensivement étudiée pour contrôler les degrés de liberté spatiaux de la lumière avec par exemple la génération de vortex optique, faisceau également chiral, dont le front d'onde évolue de manière hélicoïdale. L'étude des plasmons de surface dans le cadre de la chiralité offre donc des perspectives prometteuses dans l'exaltation des effets chiroptiques [3], la manipulation de nano-objet [4] et le transport optique d'information [5].

La compréhension de cette nouvelle classe de matériaux a conduit à des nouveaux concepts physiques et nécessite de développer de nouvelles techniques pour caractériser les effets chiroptiques à l'échelle sub-longueur d'onde. L'objectif de cette thèse est d'établir des méthodes expérimentales pour sonder et manipuler la chiralité de la lumière dans des structures plasmoniques. Au cours de cette thèse, nous avons démontré qu'au moyen de techniques complémentaires combinant microscopie en champ proche optique (*Scanning Near Field Optical Microscope*, SNOM), microscopie à fuites radiatives (*Leakage Radiation Microscopy*, LRM) et tomographie en polarisation, nous pouvons générer et examiner efficacement des effets chiroptiques induits dans ces systèmes. D'une part, nous avons élaboré des dispositifs plasmoniques permettant de générer des vortex plasmoniques et de transférer l'information sur la trajectoire des plasmons dans le spin de la lumière. Ces systèmes ont été rendus possible grâce à une analyse approfondie de la chiralité 2D et 3D des nanostructures. D'autre part, nous avons mis en évidence les propriétés de chiralité de la densité locale d'états optique (*Local Density of States*, LDOS) associée à des cavités plasmoniques chirales. En connectant les figures de mérite de la chiralité au concept général de LDOS, nous avons pu étendre la description et la mesure des interactions lumière-matière aux environnements chiraux.

Le manuscrit de thèse est organisé en sept chapitres :

- Le Chapitre 1 est une introduction générale sur la plasmonique. Nous aborderons en particulier les notions théoriques directement connectées à notre recherche, c'est à dire les propriétés optiques des plasmons de surface propagatifs. Nous en déduirons les conditions de couplage entre les photons et les plasmons de surface. Nous passerons également en revue les techniques les plus courantes pour les exciter et les observer.
- Nous évoquerons dans le Chapitre 2 le concept général de couplage spin-orbite

- de la lumière. Je présenterai également les principaux résultats, obtenus au début de ma thèse en collaboration avec Q. Jiang [6], sur l'excitation unidirectionnelle plasmonique, dont les détails peuvent être trouvés dans son manuscrit de thèse. Dans la continuité de ces travaux, nous utiliserons certains résultats clés pour le design et la modélisation théorique des métasurfaces plasmoniques élaborées dans mes recherches, c'est à dire des réseaux constitués de nanostructures élémentaires métalliques en forme de  $T$  ou  $\Lambda$ .
- Dans le Chapitre 3, nous présenterons la méthode de fabrication des échantillons et introduirons les deux montages optiques utilisés au cours de ma thèse : un dispositif d'excitation des plasmons en champ lointain et un microscope en champ proche optique à balayage. J'aborderai également le principe de la microscopie à fuite radiative et la tomographie en polarisation, outils particulièrement adaptés à l'étude des effets chiroptiques.
  - Dans le Chapitre 4, nous démontrerons la coexistence d'effets chiraux optiques 2D et 3D générés par des nanostructures plasmoniques en forme de  $\Lambda$ . Nous rapporterons une méthode de caractérisation, non-invasive, basée sur l'analyse des matrices de Jones chirales. La manifestation de cette chiralité mixte révélera la présence conjointe de défauts structuraux 2D et 3D au sein de notre échantillon. Finalement, nous introduirons une version étendue du modèle de Kuhn généralisée aux milieux à chiralité mixte. Ce modèle microscopique nous permettra d'expliquer intuitivement la réponse macroscopique décrite par les matrices de Jones chirales.
  - Le Chapitre 5 expose mes recherches menées sur le mécanisme réciproque de l'effet spin Hall optique à l'aide de métasurfaces formées de nano-ouvertures en  $T$ . Ce dispositif planaire et compact permettra d'une part de convertir un faisceau plasmonique incident en une onde polarisée circulairement, et dont le sens de rotation sera conditionné par le trajet des plasmons. D'autre part, cette fonctionnalité à préserver l'information sur la trajectoire des plasmons sera mise en œuvre dans une expérience de brouillage d'interférence, où elle sera utilisée comme marqueur de chemin, pour discuter la complémentarité entre le comportement ondulatoire et corpusculaire des plasmons dans le régime classique.
  - Le Chapitre 6 est consacré à la génération de vortex plasmoniques par des lentilles plasmoniques chirales. Nous démontrerons que l'imagerie LRM est particulièrement adaptée pour analyser quantitativement les modes de polarisation contenus dans les vortex. Ces derniers peuvent être manipuler au moyen d'une règle de sélection qui est gouvernée par la chiralité de la lentille et du spin incident. En combinant géométrie spirale et nanostructures  $\Lambda$ , nous démontrerons un dispositif permettant de contrôler l'intensité et le contenu orbital des vortex plasmoniques.
  - Le dernier Chapitre 7 est dédié à la caractérisation de la LDOS optique dans un environnement plasmonique chiral. D'une part, au moyen d'une sonde SNOM classique à ouverture puis d'une sonde active constituée d'un nanodiamant contenant des centres azote-lacunes, nous révélerons qu'une cavité plasmonique spirale possède une LDOS partielle chirale. D'autre part, nous relierons la chiralité optique aux processus d'interaction lumière-matière en

connectant le concept de LDOS à la densité et au flux de chiralité. Enfin, nous discuterons comment le degré de polarisation circulaire peut constituer une observable en champ lointain et en champ proche de la chiralité.

# Liste de publications

Ce manuscrit de thèse contient des résultats qui ont fait l'objet de publications :

1. Quanbo Jiang, **Aline Pham**, Martin Berthel, Serge Huant, Joel Bellessa, Cyriaque Genet, and Aurélien Drezet. Directional and singular surface plasmon generation in chiral and achiral nanostructures demonstrated by leakage radiation microscopy. *ACS Photonics*, 3(6) :1116–1124, 2016.
2. Quanbo Jiang, **Aline Pham**, Serge Huant, Joel Bellessa, Cyriaque Genet, and Aurélien Drezet. Highly efficient singular surface plasmon generation by achiral apertures. *Optics letters*, 41(19) :4534–4537, 2016.
3. **Aline Pham**, Martin Berthel, Quanbo Jiang, Joel Bellessa, Serge Huant, Cyriaque Genet, and Aurélien Drezet. Chiral optical local density of states in a spiral plasmonic cavity. *Physical Review A*, 94(5) :053850, 2016.
4. **Aline Pham**, Quanbo Jiang, Airong Zhao, Joel Bellessa, Cyriaque Genet, and Aurélien Drezet. Manifestation of planar and bulk chirality mixture in plasmonic  $\Lambda$ -shaped nanostructures caused by symmetry breaking defects. *ACS Photonics*, 4(10) :2453–2460, 2017.
5. **Aline Pham**, Airong Zhao, Quanbo Jiang, Joel Bellessa, Cyriaque Genet, and Aurélien Drezet. Interference Eraser Experiment Demonstrated with All-Plasmonic Which-Path Marker Based on Reverse Spin Hall Effect of Light. *ACS Photonics*, 5(3) :1108–1114, 2018.
6. **Aline Pham**, Airong Zhao, Cyriaque Genet, and Aurélien Drezet. Optical chirality density and flux measured in the local density of states of spiral plasmonic structures. *Physical Review A*, 98(1) :013837, 2018.

# Liste de communications

Ce manuscrit de thèse contient des résultats qui ont fait l'objet de présentations orales en conférences :

1. Chiral optical local density of states in a spiral plasmonic cavity. *Near-Field Optics-14*, Hamamatsu, Japan, Septembre 2016.
2. Chiral optical local density of states in a spiral plasmonic cavity. *Nanophotonics and Micro/Nano Optics International Conference 2016*, Paris, France, Décembre 2016.
3. Directional and singular surface plasmon generation in chiral and achiral nanostructures demonstrated by leakage radiation microscopy. *Nanophotonics and Micro/Nano Optics International Conference 2017*, Barcelone, Spain, Septembre 2017.
4. Manifestation of planar and bulk chirality mixture in plasmonic  $\Lambda$ -shaped nanostructures caused by symmetry breaking defects. *Photonics Europe 2018*, Strasbourg, France, Avril 2018.
5. Interference Eraser Experiment Demonstrated with All-Plasmonic Which-Path Marker Based on Reverse Spin Hall Effect of Light. *Near-Field Optics-15*, Troyes, France, Août 2018.

Ce travail de thèse a également contribué aux publications suivantes :

1. Airong Zhao, **Aline Pham**, Nessim Jebali, and Aurélien Drezet. Spin-orbital angular momentum tomography of a chiral plasmonic lens using leakage radiation microscopy. *Optics letters*, 43(8) :1918-1921, 2018.
2. Quanbo Jiang, Julien Laverdant, Clementine Symonds, **Aline Pham**, Cecile Leluyer, Stephan Guy, Aurelien Drezet and Joel Bellessa. Metasurface for Reciprocal Spin-Orbit Coupling of Light on Waveguiding Structures. *Physical Review Applied*, 10(1) :014014, 2018.

# Chapitre 1

## Les plasmons de surface

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>13</b>
<b>1.2</b>	<b>Conditions d'existence des plasmons de surface</b>	<b>14</b>
1.2.1	Le champ proche optique	15
1.2.2	Modes transverses magnétiques	17
<b>1.3</b>	<b>Propriétés optiques des plasmons de surface</b>	<b>19</b>
1.3.1	Relation de dispersion	19
1.3.2	Propagation des plasmons de surface	19
1.3.3	Distance de propagation	22
1.3.4	Confinement transversal	22
<b>1.4</b>	<b>Couplage photons-plasmons de surface</b>	<b>23</b>
1.4.1	Relation d'accord de phase	23
1.4.2	Couplage par réseau de diffraction	24
1.4.3	Double interfaces : couplage par prisme et microscopie à fuites radiatives	25
1.4.4	Microscopie champ proche optique	28
<b>1.5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>30</b>

---

### 1.1 Introduction

Motivée par une demande toujours croissante de transmission de données, la nanophotonique joue un rôle central pour accompagner la microélectronique et les télécommunications dans la satisfaction des besoins futurs en bande passante. Dans ce contexte, des recherches approfondies sur l'interaction de la lumière avec des structures de taille sub-longueur d'onde ont été menées. Toutefois, les composants optiques traditionnels étant limités par la diffraction de la lumière, la plasmonique a alors suscité un intérêt croissant ces vingt dernières années en raison de son potentiel élevé en terme d'intégration et de miniaturisation des fonctions optiques.

La plasmonique étudie les propriétés des plasmons de surface. Historiquement, leur description mathématique remonte au début du XX<sup>e</sup> siècle. Elle a été établie dans



le contexte des ondes radio afin d'étudier leur propagation sur des surfaces métalliques [7, 8]. Puis dans les années 1960, les travaux de Ritchie, Kretchman et Raether mettent en évidence l'excitation des plasmons de surface dans le domaine optique. C'est au milieu des années 1990 que le domaine de la plasmonique connaît un essor majeur avec les progrès dans les techniques de nanofabrication. Des systèmes avec un contrôle accru des propriétés optiques et des plasmons de surface ont alors pu voir le jour. Par exemple, ces avancées ont considérablement contribué à l'émergence des métamatériaux, des systèmes manifestant des propriétés optiques inédites non disponibles dans les matériaux naturels [9, 10]. Le confinement des plasmons de surface, au-delà de la limite de diffraction, a ouvert la voie à de nombreuses applications potentielles telles que les circuits photoniques miniaturisés, laissant ainsi entrevoir une intégration dense avec les dispositifs électroniques [11].

Dans cette première partie, nous allons présenter les concepts généraux relatifs aux plasmons de surface. Après avoir introduit la notion de champ proche optique, nous établirons les critères d'existence des plasmons de surface. Nous aborderons cette étude dans le cadre des équations de Maxwell qui nous permettra ensuite d'établir une description théorique simple des plasmons de surface. Nous discuterons de leurs propriétés optiques fondamentales ainsi que les conditions déterminantes dans le couplage des plasmons avec la lumière. Enfin, nous présenterons les techniques expérimentales couramment utilisées pour l'excitation et l'observation des plasmons de surface.

## 1.2 Conditions d'existence des plasmons de surface

Par définition, le plasma dans un métal désigne un gaz d'électron libres. Soumis à un mouvement d'oscillation, celui-ci induit un champ électromagnétique dont la quantification est appelée plasmon. Notre étude est consacrée à l'étude des plasmons de surface polaritons, c'est à dire lorsque l'oscillation collective des électrons est localisée à l'interface entre le métal et un diélectrique. Le polariton fait référence à la nature hybride entre les oscillations de la matière et l'onde électromagnétique existant à la surface du métal.

Selon la structure dans laquelle sont générés les plasmons de surface, nous pouvons distinguer deux régimes :

1. Bien que ce champ d'étude s'étend au delà du cadre de cette thèse, évoquons toutefois le cas des plasmons de surface localisés. Il s'agit de plasmons de surface produits au sein de nanoparticules métalliques de dimensions sub-longueur d'onde. Ces modes non-propagatifs sont accompagnés d'un confinement intense du champ à la surface des nanostructures et dont les propriétés sont déterminées par la forme et la taille des nanoparticules. Ceux-ci font l'objet d'importantes études notamment dans le contrôle et l'exaltation des propriétés d'émission de sources lumineuses [12, 13] et la détection de molécule fluorescente unique [14, 15].
2. Lorsque nous nous intéressons à la propagation des plasmons de surface sur

des films métalliques plans, nous parlerons des plasmons de surface délocalisés qui désignent les modes propagatifs confinés à l'interface entre un métal et un diélectrique. Ils seront le sujet central de notre travail.

Afin de décrire les propriétés optiques essentielles des plasmons de surface propagatifs, évoquons dans un premier temps les concepts physiques de champ proche optique.

### 1.2.1 Le champ proche optique

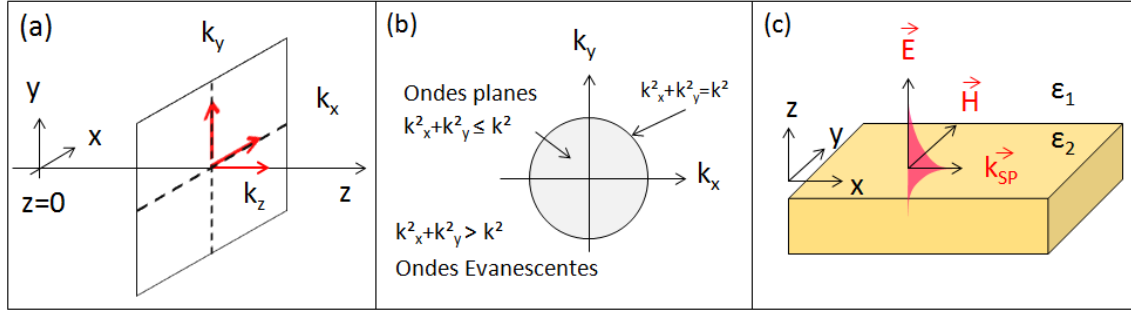


FIGURE 1.1 – (a) Notations et (b) représentation de l'espace de Fourier. (c) Champ plasmonique à l'interface air/or.

Pour introduire la notion de champ proche optique, la représentation angulaire spectrale apparaît comme une méthode pratique qui permet d'exprimer le champ électrique comme une superposition d'ondes planes et d'ondes évanescentes.

Considérons un rayonnement lumineux monochromatique se propageant selon l'axe optique  $Oz$  dans un milieu linéaire, isotrope, homogène et sans charge (Fig. 1.1(a)). Le champ électrique associé s'écrit  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \Re(\mathbf{E}(\mathbf{r})e^{-i\omega t})$ , avec  $\mathbf{r} = x\hat{x} + y\hat{y} + z\hat{z}$  le vecteur position et  $\omega$  la pulsation. Celui-ci doit notamment satisfaire à l'équation de propagation donnée par l'équation de Helmholtz suivante :

$$(\nabla^2 + k^2)\mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0, \quad (1.1)$$

avec  $k = n(\omega/c)$  le vecteur d'onde et  $n$  l'indice de réfraction du milieu. Nous supposons que le champ électrique initial, dans le plan transverse situé à  $z = 0$ , est connu. Nous cherchons à formuler l'expression du champ électrique, en tout point  $z$ .

Pour ce faire, décomposons le champ électrique  $\mathbf{E}(x, y, z)$ , en ces composantes de Fourier suivant  $\hat{x}$  et  $\hat{y}$ . A  $z$  constant, il s'écrit :

$$\mathbf{E}(x, y, z) = \int \int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\mathbf{E}}(k_x, k_y; z) e^{i(k_x x + k_y y)} dk_x dk_y, \quad (1.2)$$

où  $k_x, k_y$  sont les fréquences spatiales et  $\hat{\mathbf{E}}$  désigne la transformée de Fourier de  $\mathbf{E}$ . En injectant l'Eq. 1.2 dans l'équation de Helmholtz (Eq. 1.1), on obtient :

$$\hat{\mathbf{E}}(k_x, k_y; z) = \hat{\mathbf{E}}(k_x, k_y; 0) e^{\pm i k_z z}, \quad (1.3)$$

où la notation  $\pm$  indique la direction de propagation du champ et  $k_z$  la composante selon  $\hat{z}$  du vecteur d'onde, définie telle que :

$$k_z = \sqrt{k^2 - (k_x^2 + k_y^2)}. \quad (1.4)$$

L'Eq. 1.3 montre que l'évolution spatiale du champ dans l'espace réciproque peut se déduire du champ à la position initiale  $z = 0$  à l'aide du facteur multiplicatif  $e^{\pm ik_z z}$ , aussi appelé propagateur. Finalement, nous en déduisons la représentation angulaire spectrale suivante :

$$\mathbf{E}(x, y, z) = \int \int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\mathbf{E}}(k_x, k_y; 0) e^{i(k_x x + k_y y \pm k_z z)} dk_x dk_y. \quad (1.5)$$

D'une part, cette expression permet d'obtenir le champ en tout point  $\mathbf{r}$ . Elle fait apparaître que le champ peut être développé sur une base d'onde d'amplitude  $\hat{\mathbf{E}}(k_x, k_y; 0)$  dont les vecteurs d'onde  $\mathbf{k}$  vérifient la relation de dispersion dans le vide :

$$\frac{\omega^2}{c^2} = k_x^2 + k_y^2 + k_z^2. \quad (1.6)$$

D'autre part, selon les fréquences spatiales du champ, deux cas de figures peuvent être distingués. Pour un milieu diélectrique, sans pertes ( $n$  réel et positif) :

- Si  $k^2 \geq (k_x^2 + k_y^2)$ , alors  $k_z$  est réel et  $e^{\pm i|k_z|z}$  est une fonction oscillante qui décrit des ondes planes. Dans ce cas, le rayonnement se propage librement dans le champ lointain.
- Si  $k^2 < (k_x^2 + k_y^2)$ ,  $k_z$  est alors imaginaire et la fonction  $e^{-|k_z||z|}$  décroît de façon exponentielle selon  $z$ . Cette condition décrit les ondes évanescentes et sont caractéristiques du régime appelé champ proche optique.

Ainsi, la représentation spectrale angulaire permet de formuler le champ comme une superposition d'ondes planes et d'ondes évanescentes. Elle montre que la propagation agit comme un filtre passe bas qui ne laisse passer que les fréquences spatiales inférieures à la fréquence de coupure  $k = n(\omega/c)$ . Au delà de cette fréquence, les ondes sont évanescentes et restent confinées au voisinage champ proche de la source (Fig. 1.1(b)).

Une première conséquence de ce résultat est que la propagation du rayonnement engendre une perte d'information sur le champ au voisinage direct de la source. Par conséquent, une image optique obtenue en champ lointain ne peut fournir des détails de dimensions inférieures à la longueur d'onde car les hautes fréquences spatiales sont filtrées lors de la propagation. Ce phénomène est notamment à l'origine de la limite de résolution optique des microscopes traditionnels qui opèrent en champ lointain. De plus, cette propriété présuppose qu'il est nécessaire de placer le capteur à proximité immédiate de l'émetteur pour pouvoir détecter les ondes évanescentes. Nous verrons que cette contrainte s'applique également aux plasmons de surface dont nous allons maintenant détailler les propriétés.

## 1.2.2 Modes transverses magnétiques

L'objectif de ce paragraphe est de déterminer les solutions particulières des équations de Maxwell correspondant aux plasmons de surface. Nous allons montrer que ces modes de surface correspondent à des modes de polarisation transverse magnétique (TM).

Pour ce faire, traitons le cas simple d'une interface  $(O, x, y)$  séparant 2 milieux semi-infinis de constantes diélectriques  $\varepsilon_1$  ( $z \geq 0$ ) et  $\varepsilon_2$  ( $z < 0$ ) (Fig. 1.1(c)). Dans le cadre de notre étude, le milieu 1 sera constitué d'air  $\varepsilon_1 = 1$  et le milieu 2 de métal et plus exactement de l'or  $\varepsilon_2 = -11.6 + 1.2i$  (à  $\lambda = 633 \text{ nm}$ ).

Nous rappelons que les équations des Maxwell s'écrivent :

$$\nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \rho(\mathbf{r}, t), \quad (1.7)$$

$$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial \mathbf{B}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}, \quad (1.8)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = 0, \quad (1.9)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \frac{\partial \mathbf{D}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} + \mathbf{j}(\mathbf{r}, t), \quad (1.10)$$

où  $\mathbf{E}$  est le champ électrique,  $\mathbf{D}$  le déplacement électrique,  $\mathbf{H}$  le champ magnétique,  $\mathbf{B}$  l'induction magnétique,  $\rho$  la densité de charge et  $\mathbf{j}$  la densité de courant. Pour décrire le comportement de la matière sous l'influence d'un champ, les équations de Maxwell sont complétées par les relations constitutives suivantes :

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon \varepsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad \text{avec} \quad \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \chi_e \mathbf{E}(\mathbf{r}, t), \quad (1.11)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \mu \mu_0 \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) \quad \text{avec} \quad \mathbf{M}(\mathbf{r}, t) = \chi_m \mathbf{H}(\mathbf{r}, t), \quad (1.12)$$

où  $\varepsilon = (1 + \chi_e)$  et  $\mu = (1 + \chi_m)$  sont respectivement la permittivité diélectrique et la perméabilité magnétique relative (l'indice 0 se réfère au cas du vide),  $\chi_e$  et  $\chi_m$  sont respectivement la susceptibilité électrique et magnétique. Dans ce travail, nous nous intéresserons à la propagation des ondes lumineuses dans les milieux non-magnétiques ( $\mu = \mu_0$ ), linéaires ( $\chi_e = \chi_e^{(1)}$ ), isotropes ( $\chi_e$  est scalaire), homogènes (pas de variation de  $\varepsilon$  avec  $\mathbf{r}$ ), sans charges ( $\rho = 0$ ), ni courants libres ( $\mathbf{j} = 0$ ). Pour une onde monochromatique, les champs s'écrivent :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)}, \quad \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \begin{pmatrix} H_x \\ H_y \\ H_z \end{pmatrix} e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)}, \quad (1.13)$$

où  $\mathbf{k}$  est le vecteur d'onde et  $\mathbf{r}$  le vecteur position.

A l'aide des équations de Maxwell, nous cherchons à décrire les modes répondant aux critères des plasmons de surface c'est à dire des modes pouvant se propager à l'interface  $(O, x, y)$  mais évanescents dans la direction normale  $(Oz)$ . Ils doivent satisfaire les conditions suivantes :

1. La propagation le long de la surface est assurée si les composantes parallèles du vecteur d'onde dans chaque milieu  $\mathbf{k}_i^{\parallel} = k_x \hat{x} + k_y \hat{y}$  ( $i = 1, 2$ ) possèdent une partie réelle strictement positive. Elles doivent aussi être continues à l'interface, d'où :

$$\mathbf{k}_1^{\parallel} = \mathbf{k}_2^{\parallel} = \mathbf{k}_{SP}, \quad (1.14)$$

$$\Re(\mathbf{k}_{SP}) > 0, \quad (1.15)$$

où nous avons introduit le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_{SP}$  associé aux plasmons de surface se propageant dans le plan  $Oxy$  entre le métal et le diélectrique. On considèrera par la suite la situation illustrée sur la Fig. 1.1(c) où  $\mathbf{k}_{SP} = k_{SP} \hat{x}$ .

2. Comme expliqué ci-dessus, une onde est évanescente suivant la direction  $z$  si son vecteur d'onde  $\mathbf{k}_i^{\perp} = k_{z,i} \hat{z}$  possède une partie imaginaire strictement négative, soit :

$$\Im(k_{z,i}) < 0 \quad (i=1,2). \quad (1.16)$$

Dans ce cas, le champ plasmonique décroît exponentiellement de part et d'autre de l'interface.

3. Les modes plasmons doivent satisfaire l'équation d'onde, déduite des équations de Maxwell (Eq. 1.8) et des relations constitutives (Eq. 1.11). Elle permet de relier le vecteur d'onde plasmons  $k_{SP}$  et transverse  $k_{z,i}$  dans chaque milieu tel que :

$$k_{SP}^2 + k_{z,i}^2 = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon_i \quad (i=1,2). \quad (1.17)$$

A l'aide de ces trois critères, nous pouvons définir les plasmons de surface comme des modes de surface confinés à l'interface, dont nous allons maintenant démontrer qu'il s'agit de mode de polarisation TM.

Tout d'abord, on rappelle que les ondes de polarisation transverse électrique (TE) et magnétique (TM) sont caractérisées respectivement par un champ électrique et magnétique perpendiculaire au plan d'incidence. Traitons ces deux cas séparément.

**Polarisation TE** Pour un mode TE, seules les composantes suivant  $y$  sont non nulles. D'une part, les relations de continuité du champ électrique impose  $E_{y,1} = E_{y,2} = E_0$ , soit :

$$\mathbf{E}_i = \begin{pmatrix} 0 \\ E_0 \\ 0 \end{pmatrix} e^{i(k_{SP}x + k_{z,i}z)} \quad (i=1,2). \quad (1.18)$$

D'autre part, d'après l'Eq. 1.8 et la continuité du champ magnétique suivant  $x$ ,  $\partial \mathbf{E}_i / \partial z$  doit aussi être continu. On obtient alors :

$$k_{z,1} + k_{z,2} = 0. \quad (1.19)$$

Or cette condition est en contradiction avec l'Eq. 1.16, ce qui implique que les modes TE ne peuvent pas décrire des modes de surface.

**Polarisation TM** Dans le cas des modes TM, le champ électrique appartient au plan d'incidence par conséquent, ses composantes selon  $y$  sont maintenant nulles. D'une part, la continuité des composantes tangentielles se traduit par  $E_{x,1} = E_{x,2} = E_0$ , soit :

$$\mathbf{E}_i = \begin{pmatrix} E_0 \\ 0 \\ E_{z,i} \end{pmatrix} e^{i(k_{SP}x + k_{z,i}z)} \quad (i=1,2). \quad (1.20)$$

D'autre part, à partir de l'Eq. 1.8, on obtient  $k_{z,1}E_{z,1} + k_{z,2}E_{z,2} = 0$  et la continuité de  $\varepsilon_i E_{z,i}$  impose :

$$k_{z,1}E_{z,2} + k_{z,2}E_{z,1} = 0. \quad (1.21)$$

Nous en déduisons que les ondes de surface ne peuvent exister que sous forme de modes TM satisfaisant la condition ci-dessus. Ce résultat va notamment nous permettre d'extraire les caractéristiques optiques des plasmons de surface.

## 1.3 Propriétés optiques des plasmons de surface

### 1.3.1 Relation de dispersion

En combinant l'Eq. 1.17 avec l'Eq. 1.21, nous en déduisons les relations de dispersion des plasmons de surface suivantes :

$$k_{SP} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}}, \quad (1.22)$$

$$k_{z,i} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_i^2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}}. \quad (1.23)$$

Les conditions d'existence des plasmons de surface décrites par les Eq. 1.15 et 1.16 nécessitent que les fonctions diélectriques satisfassent les critères suivants :

$$\varepsilon_2 < 0, \quad (1.24)$$

$$\varepsilon_2 < -\varepsilon_1. \quad (1.25)$$

Dans le cas d'une interface air/métal cette condition est effectivement satisfaite aux longueurs d'onde optiques. Discutons maintenant des implications physiques de ces relations de dispersion.

### 1.3.2 Propagation des plasmons de surface

Dans un premier temps, notons que  $k_{SP}$  est un nombre complexe dont la partie réelle  $\Re(k_{SP})$  caractérise la propagation des plasmons de surface le long de l'interface. Nous pouvons définir un indice effectif et une longueur d'onde, caractéristiques des plasmons de surface, tels que :

$$n_{SP} = \frac{\Re(k_{SP})}{k_0}, \quad (1.26)$$

$$\lambda_{SP} = \frac{2\pi}{\Re(k_{SP})}, \quad (1.27)$$

où  $k_0 = 2\pi/\lambda$ . A la longueur d'onde travail  $\lambda = 633 \text{ nm}$ , nous trouvons une valeur de  $\lambda_{SP} \simeq 603 \text{ nm}$  et  $n_{SP} \simeq 1.05$ .

Dans un second temps, afin déterminer l'évolution de  $\Re(k_{SP})$  en fonction de la fréquence  $\omega$ , nous devons calculer la fonction diélectrique  $\varepsilon_2$ . Pour ce faire, nous pouvons utiliser le modèle de Drude-Lorentz.

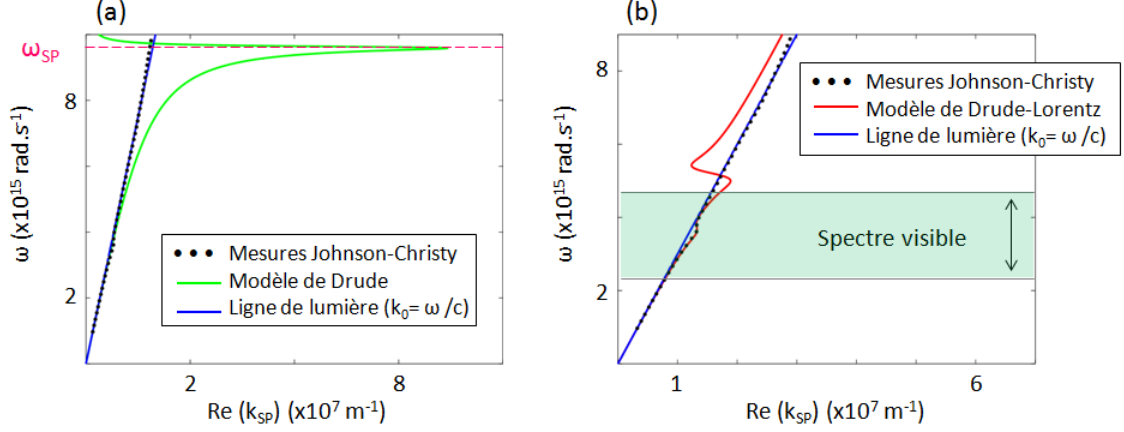


FIGURE 1.2 – Relations de dispersion des plasmons de surface calculées selon : (a) le modèle de Drude ( $\omega_p = 1.36 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$ ,  $\gamma = 10^{14} \text{ s}^{-1}$ ), (b) le modèle de Drude Lorentz ( $\omega_p = 4.5 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ ,  $\omega_0 = 4.2 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ ,  $\zeta = 8.9 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$ ). Les mesures expérimentales sont tirées de [16].

**Le modèle de Drude** Tout d'abord, introduisons le modèle de Drude dans lequel les électrons de conduction du métal sont décrit comme un gaz d'électrons libres. Dans ce modèle, l'application d'un champ électrique extérieur  $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}$  engendre un mouvement d'oscillation des électrons. Ces derniers sont ralentis par les collisions avec les ions positifs fixes du métal. L'équation du mouvement d'un électron appartenant au gaz d'électrons libres s'écrit :

$$m_e \frac{\partial^2 \mathbf{r}}{\partial t^2} + m_e \gamma \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} = e \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}, \quad (1.28)$$

où  $m_e$  est la masse et  $e$  la charge de l'électron. L'amortissement est modélisé par une force de friction de fréquence caractéristique de collision  $\gamma$ . Le déplacement des électrons  $\mathbf{r}(t) = \mathbf{r}(0) e^{-i\omega t}$  engendre une polarisation du milieu  $\mathbf{P}(t) = (\varepsilon_2 - 1) \varepsilon_0 \mathbf{E}(t) = -N e \mathbf{r}(t)$ , où  $N$  est la densité de charge électronique. L'expression de la fonction diélectrique du métal déduite du modèle de Drude s'écrit :

$$\varepsilon_D(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}, \quad (1.29)$$

où  $\omega_p^2 = \frac{N e^2}{\varepsilon_0 m_e}$  est la fréquence plasma des électrons libres.

Nous avons tracé sur la Fig. 1.2(a), la relation de dispersion correspondant au modèle de Drude (courbe verte). Le cône de lumière  $k_0 = \omega/c$  (en bleu) délimite le régime des ondes propagatives ( $k < k_0$ ) de celui des ondes évanescentes ( $k > k_0$ ). A basses fréquences, on constate que le modèle de Drude reproduit bien les données expérimentales mesurées par Johnson-Christy [16]. La relation de dispersion se confond à la ligne de lumière dans l'air traduisant un confinement transverse faible des plasmons. Au fur et à mesure que la fréquence augmente, la relation de dispersion tend vers une valeur asymptotique  $\omega_{SP} = \omega_p/\sqrt{2}$ . Elle correspond à la fréquence de résonance plasmons pour laquelle le confinement est maximal et le couplage entre les oscillations du plasma électronique avec les modes de surface est le plus efficace. Au voisinage de la fréquence de résonance et à plus hautes fréquences, on remarque que le vecteur d'onde plasmon diverge et diffère fortement des valeurs réelles. Au delà, lorsque  $\omega > \omega_{SP}$ , la condition  $\varepsilon_2 < 0$  n'est plus satisfaite. Le mode TM se propage librement dans le métal et n'est plus confiné en surface. Pour cette gamme spectrale, le modèle de gaz d'électrons libres n'est plus suffisant pour décrire le comportement des plasmons.

**Le modèle de Lorentz** Le modèle de Lorentz permet de tenir compte des transitions interbandes qui peuvent intervenir à plus hautes énergies. En effet, les électrons de la bande de valence peuvent être excités vers la bande de conduction. Ces transitions sont alors modélisées par des électrons qui sont liés à la maille du métal par une force de ressort de constante  $\zeta$ . L'équation du mouvement des électrons liés s'écrit alors :

$$m \frac{\partial^2 \mathbf{r}}{\partial t^2} + m\gamma \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} + \zeta \mathbf{r} = e \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}, \quad (1.30)$$

où  $m$  est la masse effective des électrons liés. La résolution de cette équation conduit à la fonction diélectrique suivante :

$$\varepsilon_L(\omega) = 1 + \frac{\tilde{\omega}_p^2}{(\omega_0^2 - \omega^2) - i\gamma\omega}, \quad (1.31)$$

où  $\tilde{\omega}_p^2 = \frac{\tilde{N}e^2}{\varepsilon_0 m}$ ,  $\tilde{N}$  est la densité des électrons liés, et  $\omega_0^2 = \zeta/m$ . Le modèle de Lorentz permet de compléter le modèle de Drude qui permet de rendre compte de la réponse des électrons liés dans le métal.

**Le modèle de Drude-Lorentz** Nous avons tracé sur la Fig. 1.2(b) la relation de dispersion du modèle de Drude-Lorentz qui intègre dans la fonction diélectrique du métal la réponse des électrons libres ainsi que les transitions interbandes, soit :  $\varepsilon_2 = \varepsilon_D + \varepsilon_L + \varepsilon_\infty$ . La constante  $\varepsilon_\infty = 6$  est un paramètre d'ajustement pour rendre compte des transitions interbandes se produisant à plus hautes énergies, non considérées par ces modèles. Sur la Fig. 1.2(b), on note que dans la gamme spectrale du visible, le modèle de Drude-Lorentz s'accorde bien aux données expérimentales de  $\Re(k_{SP})$  associées la propagation des plasmons à l'interface. Notons qu'au delà du spectre visible, ce modèle simple n'est plus suffisant pour décrire le comportement



des plasmons.

En outre, dans les métaux réels, la propagation des plasmons est amortie par l'absorption dans le métal. Tandis que la partie réelle de  $k_{SP}$  décrit la propagation de l'onde, sa partie imaginaire détermine son atténuation au cours de la propagation.

### 1.3.3 Distance de propagation

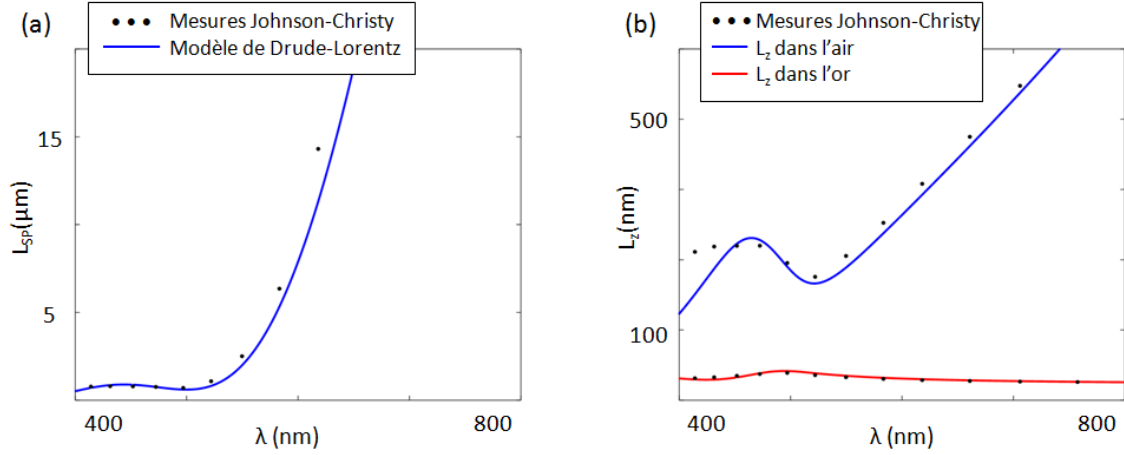


FIGURE 1.3 – (a) Évolution de la longueur de propagation des plasmons de surface  $L_{SP}$  à l'interface air/or en fonction de la longueur d'onde. (b) Épaisseurs de peau  $L_z$  calculées dans l'air et dans l'or.

A partir de la partie imaginaire du vecteur d'onde  $\Im(k_{SP})$ , nous pouvons définir une longueur de propagation plasmons telle que :  $L_{SP} = \frac{1}{2|\Im(k_{SP})|}$ . Il s'agit de la distance caractéristique au bout de laquelle l'intensité initiale du champ plasmon est atténuée d'un facteur  $1/e$ . Nous avons tracé sur Fig. 1.3(a), son évolution en fonction de la longueur d'onde. A  $\lambda = 633 \text{ nm}$ ,  $L_{SP} = 20 \mu m$  mais en pratique,  $L_{SP}$  est plus faible compte tenu de la rugosité de la surface. Autour de la bande télécom ( $\lambda = 1500 \text{ nm}$ ), cette longueur de propagation peut atteindre une centaine de micromètres, ce qui fait des systèmes plasmoniques des composants planaires intéressants pour la transmission optique dans les circuits photoniques.

### 1.3.4 Confinement transversal

De la même manière, on peut définir une longueur de propagation des plasmons, suivant la normale à l'interface, à partir de la partie imaginaire du vecteur d'onde transverse soit  $\Im(k_{z,i})$  ( $i=1,2$ ). On rappelle que l'Eq. 1.23 implique que  $k_{z,i}$  doit être imaginaire pur. Par conséquent, les modes plasmons sont évanescents selon  $Oz$ . Afin de quantifier ce confinement, nous introduisons l'épaisseur de peau telle que  $L_z = \frac{1}{2|\Im(k_z)|}$ . Cette grandeur caractérise l'extension spatiale des plasmons de part et d'autre de l'interface. Sur la Fig. 1.3(b), pour une interface air/or à

$\lambda = 633 \text{ nm}$ , on trouve que les plasmons sont confinés dans l'air sur une distance de l'ordre  $L_{z,1} = 330 \text{ nm}$  et sur  $L_{z,2} = 28 \text{ nm}$  dans l'or. Ces résultats mettent en évidence une des propriétés majeures associées aux plasmons de surface, c'est à dire le pouvoir de concentration de la lumière sur une échelle sub-longueur d'onde dans la direction transverse à l'interface.

Outre les propriétés de propagation et de confinement, les relations de dispersion présentées sur la Fig. 1.2 montrent que le vecteur d'onde plasmon se situe en dehors du cône de lumière dans l'air, soit dans le régime des ondes évanescentes. Cette caractéristique implique qu'une onde propagative dans l'air ne peut se coupler aux plasmons que si elle satisfait l'accord de phase.

## 1.4 Couplage photons-plasmons de surface

### 1.4.1 Relation d'accord de phase

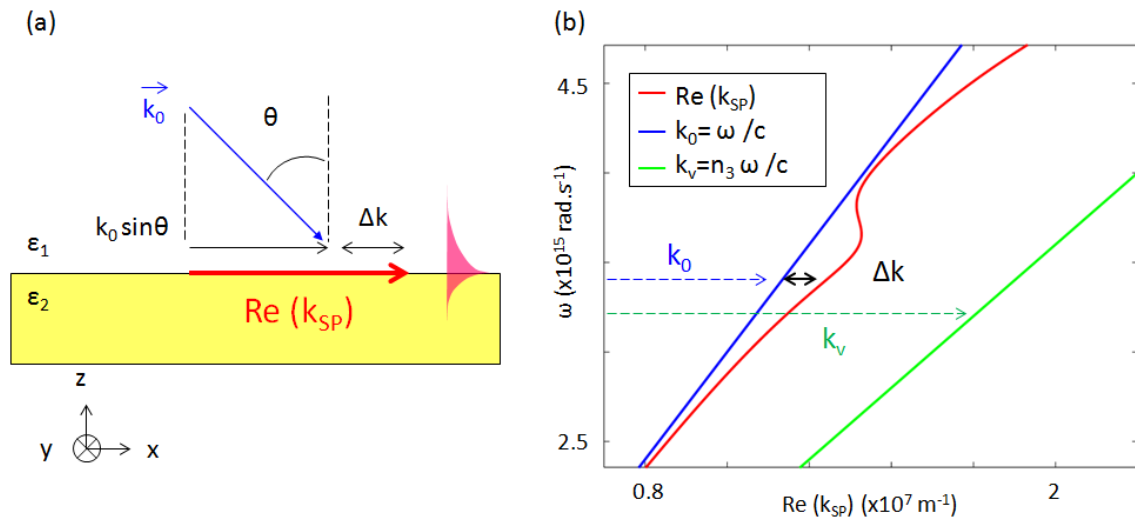


FIGURE 1.4 – (a) Illustration du désaccord de phase existant entre les modes propagatifs de l'air et les plasmons de surface. (b) Représentation du désaccord de phase sur la relation de dispersion des plasmons de surface.

Pour qu'une onde électromagnétique puisse se coupler à un mode plasmon, son vecteur d'onde doit couper la relation de dispersion du plasmon. Considérons une onde plane incidente de vecteur d'onde  $\mathbf{k}_0$  se propageant dans l'air, comme illustrée sur la Fig. 1.4(a). La relation d'accord de phase impose que sa composante tangentielle vérifie l'égalité suivante :  $k_x = k_0 \sin(\theta) = \Re(k_{SP})$ . Par la suite, on notera  $k_{SP}$  pour faire référence à  $\Re(k_{SP})$ . Sur la Fig. 1.4(b), nous avons représenté un zoom de la relation de dispersion dans la gamme spectrale du visible. On constate que, même en incidence rasante  $\theta = \pi/2$ , le critère ci-dessus ne peut pas être satisfait. En effet, pour vérifier l'accord de phase, il est nécessaire d'augmenter le vecteur d'onde d'une

quantité  $\Delta k$  telle que :

$$k_{SP} = k_0 \sin(\theta) + \Delta k. \quad (1.32)$$

Cette condition requiert des méthodes expérimentales spécifiques pour atteindre l'accord de phase. Dans la section qui suit, nous exposons les approches les plus couramment employées pour y parvenir. Nous accorderons une attention particulière aux techniques sur lesquelles se sont appuyées nos expériences : le couplage par diffraction et par ondes évanescentes.

### 1.4.2 Couplage par réseau de diffraction

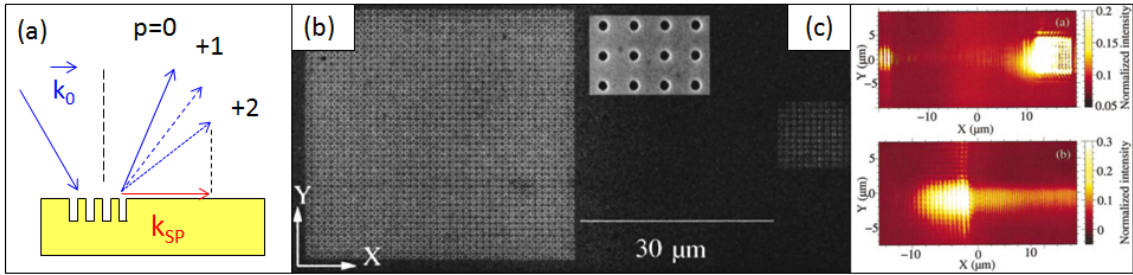


FIGURE 1.5 – (a) Illustration du principe de couplage photon-plasmon par réseau de diffraction. (b) Images MEB de réseaux plasmoniques tirées de [17] pour lancer (à gauche) et découpler les plasmons de surface (à droite). L'encart central est un zoom sur les réseaux. (c) Images optiques du champ proche montrant le découplage des plasmons en ondes propagatives (image supérieure) et la génération d'un faisceau plasmonique (image inférieure).

Du fait de la différence phase entre  $k_{SP}$  et  $k_0$ , l'observation et l'excitation des plasmons n'est possible que si l'on surpasse ce désaccord. Par exemple, le couplage/découplage des photons en plasmons peut être réalisé au moyen de la diffraction de la lumière sur des réseaux périodiques, comme illustré sur la Fig. 1.5(a). Dans l'air, lorsqu'une onde plane illumine un réseau de périodicité  $a$ , sous un angle d'incidence  $\theta$ , celle-ci est soumise au phénomène de diffraction dont les ordres  $p$  ( $p \in \mathbb{N}$ ) sont décrits par :

$$k_{\parallel}^p = k_0 \sin(\theta) + p \frac{2\pi}{a}. \quad (1.33)$$

Le vecteur d'onde longitudinal de la lumière incidente ( $k_0 \sin(\theta)$ ) peut alors être augmenté par les vecteurs de diffraction  $\Delta k = \frac{2\pi}{a}$ . Ainsi, le pas  $a$  du réseau pourra être judicieusement choisi de manière à ce que la lumière diffractée se couple aux plasmons c'est à dire tel que  $k_{\parallel}^p = k_{SP}$ . Notons que les réseaux plasmoniques peuvent servir à la fois de sources et de sondes pour produire un faisceau plasmonique ou convertir celui-ci en ondes propagatives, comme illustré sur les Fig. 1.5(b,c). Plus généralement, toute diffraction sur des perturbations à la surface du métal, telles que des trous ou des rugosités, sera susceptible de convertir la lumière propagative en plasmons de surface et réciproquement.

Nous allons maintenant voir qu'une alternative au couplage diffractif consiste à exploiter le fait que la relation de dispersion des plasmons se trouve à l'intérieur du cône de lumière dans le verre.

### 1.4.3 Double interfaces : couplage par prisme et microscopie à fuites radiatives

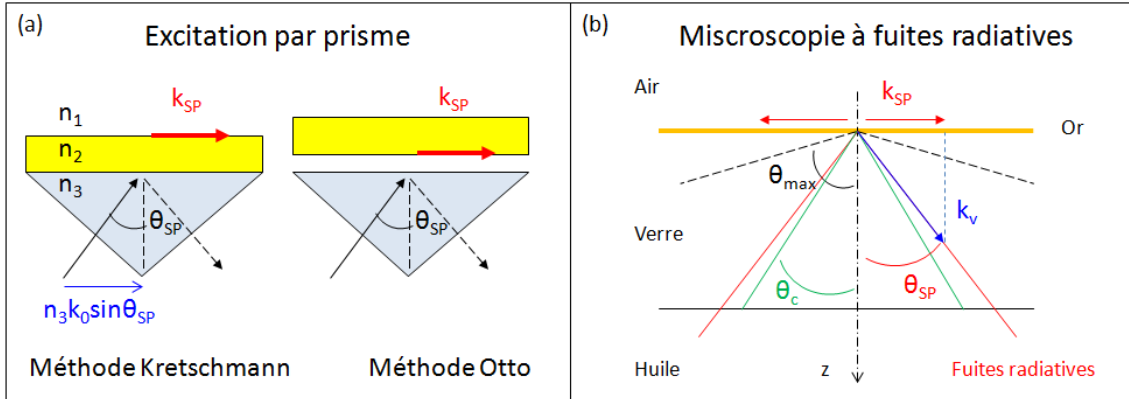


FIGURE 1.6 – (a) Illustration de la méthode Kretschman et Otto pour l'excitation des plasmons de surface. (b) Illustration du principe de la microscopie à fuites radiatives pour l'observation des plasmons de surface :  $\theta_{max}$  angle correspondant à l'ouverture numérique maximale de l'objectif de microscope,  $\theta_c$  angle critique de réflexion totale interne,  $\theta_{SP}$  angle de fuite des plasmons de surface.

#### Mode d'excitation

Comme illustré sur la Fig. 1.4(b), le vecteur d'onde de la lumière dans l'air peut être augmenté par la traversée d'un milieu d'indice de réfraction supérieur à l'air  $n_1 < n_3$  (courbe verte). Ainsi, les plasmons peuvent être excités par l'ajout d'un troisième milieu tel que verre ( $n_3 = 1.5$ ), pour lequel la courbe de dispersion des plasmons se trouve à l'intérieur du cône de lumière. En effet, la composante longitudinale du vecteur d'onde de la lumière dans le verre s'écrit  $k_{\parallel}^v = k_{air} \sin(\theta) \times n_3$ . L'accord de phase pour exciter les plasmons à l'interface air/or se produit alors pour un angle donné  $\theta_{SP}$ , lorsque  $k_{\parallel}^v = k_{SP}$ , soit :

$$k_{air} \sin(\theta_{SP}) \times n_3 = k_{SP}. \quad (1.34)$$

La méthode expérimentale de Kretschmann, présentée sur la Fig. 1.6(a), repose notamment sur ce principe : un film d'or est évaporé sur un prisme de verre à travers lequel un faisceau lumineux éclaire le métal en régime de réflexion totale interne, c'est à dire avec un angle supérieur à l'angle critique  $\theta > \theta_c \sim 42^\circ$  ( $k_{\parallel}^v > k_{air}$ ). Pour une épaisseur de métal suffisamment fine, l'onde évanescente ainsi créée fuit à travers le métal et excite les plasmons à l'interface air/or lorsque  $\theta = \theta_{SP}$ . Cet accord de phase se traduit par un minimum de réflectivité, propriété exploitée dans les biocapteurs pour détecter des changements faibles d'indice de réfraction d'un

milieu. Une variante de la configuration Kretschmann est celle utilisée par Otto qui historiquement, a permis l'observation des plasmons de surface avec une onde lumineuse (Fig. 1.6(a)) : les ondes évanescentes générées en réflexion totale interne à l'interface air-verre se couplent aux plasmons lorsque la distance séparant le prisme et le métal est de l'ordre de la longueur d'onde.

### Détection par microscopie à fuites radiatives

La microscopie à fuites radiatives (*Leakage Radiation Microscopy*, LRM) est une méthode pratique de caractérisation en champ lointain des plasmons. Elle correspond au procédé réciproque de la configuration Kretschmann dans laquelle le prisme est remplacé par un objectif de microscope d'ouverture numérique élevée et mis en contact avec le substrat par l'intermédiaire d'un liquide à immersion d'indice  $n_3$ .

Nous adopterons cette approche de détection des plasmons car, par rapport aux techniques de champ proche (discuté dans la section suivante), l'imagerie LRM capture instantanément la propagation des plasmons, sans avoir recourt au balayage point par point de l'échantillon. Le temps d'acquisition est donc beaucoup plus rapide. De plus, elle est facile à implémenter car elle ne nécessite qu'un objectif de microscope à immersion de grande ouverture numérique ( $NA > 1$ , *Numerical Aperture*) pour fonctionner.

Le principe de l'imagerie LRM est schématisé sur la Fig. 1.6(b). Nous rappelons que la propagation des plasmons de surface à l'interface air-or est caractérisée par la partie réelle du vecteur d'onde plasmon suivante :

$$\Re(k_{SP}) = \Re\left(\frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_2}{1 + \varepsilon_2}}\right) = n_{SP}k_0, \quad (1.35)$$

où  $\varepsilon_2$  est la fonction permittivité diélectrique du métal et  $n_{SP} \simeq 1.05$  est l'indice effectif plasmons à la longueur d'onde travail  $\lambda = 633 \text{ nm}$ . Lorsque l'épaisseur du métal est de l'ordre de 50 nm, les plasmons peuvent fuir dans le substrat. Le vecteur d'onde de propagation dans le verre ( $|\mathbf{k}_v| = k_0 n_3$ ) doit alors vérifier l'accord de phase :

$$k_0 n_3 \sin(\theta_{LR}) = \Re(k_{SP}) \quad \Rightarrow \quad \theta_{SP} = 44^\circ, \quad (1.36)$$

où  $n_3 = 1.5$  est l'indice de réfraction du substrat et  $\theta_{SP}$  l'angle de fuite. Les plasmons se propagent dans le substrat avec un angle supérieur à l'angle critique de réflexion totale interne donné par :

$$n_3 \sin(\theta_c) = 1 \quad \Rightarrow \quad \theta_c \sim 42^\circ, \quad (1.37)$$

qui symbolise la frontière entre le régime des ondes propagatives  $\theta < \theta_c$  et les ondes évanescentes  $\theta > \theta_c$  dans le verre. Par conséquent, la technique LRM s'appuie sur l'utilisation d'un objectif à immersion pour lequel  $NA > 1$ , dont l'ouverture numérique limite les vecteurs d'onde détectables. Par exemple, au cours de nos expériences, nous utiliserons objectif de microscope avec  $NA = 1.45 (\times 100)$ , soit :

$$NA = n_3 \sin(\theta_{max}) \quad \Rightarrow \quad \theta_{max} = 68^\circ. \quad (1.38)$$

L'utilisation d'un objectif à immersion d'ouverture numérique élevée permet ainsi de capturer tous les rayons satisfaisant  $|\mathbf{k}| < NA \times k_0$ , notamment ceux situés en dehors du cône de lumière. Comme nous le verrons dans la description du montage optique au Chapitre 3, ces angles caractéristiques seront directement accessibles dans l'espace réciproque des fréquences spatiales.

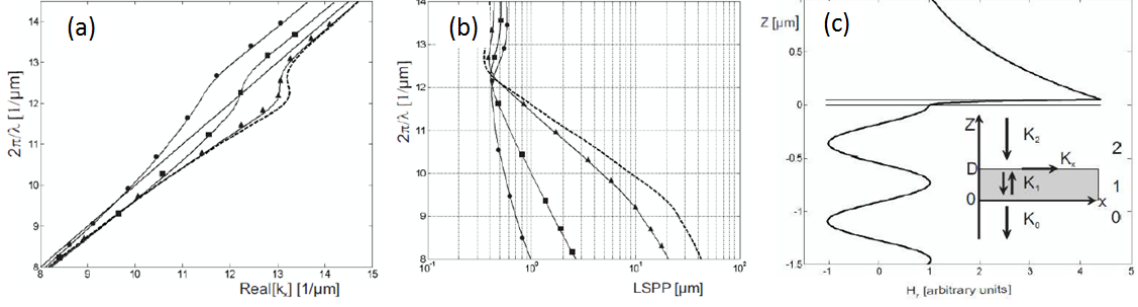


FIGURE 1.7 – (a-b) Simulations des relations de dispersion des plasmons de surface se propageant le long d'une interface air/or. Calcul effectué pour 4 épaisseurs d'or : 10 nm (ligne continue, marqueur circulaire), 20 nm (ligne continue, marqueur carré), 50 nm (ligne continue, marqueur triangle), 70 nm (ligne pointillée). Le cône de lumière est représenté par une ligne continue. (a) Évolution de la partie réelle de  $k_{SP}$ . (b) Évolution de la distance de propagation  $L_{SP}$ . (c) Évolution de la partie réelle du champ magnétique  $H$  selon  $z$  pour un film d'or d'épaisseur  $d=50$  nm à  $\lambda = 800$  nm. Figures tirées de [18].

Précisons que, selon l'épaisseur de métal  $d$  constituant ce système à trois milieux air/or/verre, on peut distinguer trois régimes de modes plasmoniques :

- Lorsque l'épaisseur du film métallique est supérieure à la longueur de pénétration des plasmons,  $L_z < d$ , le système peut être traité comme deux interfaces non-couplées. Plus le film est épais, plus l'intensité des plasmons transmis est faible. Les relations de dispersion sont alors équivalentes à celles obtenues pour deux interfaces séparant deux milieux semi-infinis air/or et or/verre. Le couplage par ondes évanescentes requiert donc que l'épaisseur d'or à déposer sur le substrat de verre soit inférieure à  $L_z \approx 70$  nm (à  $\lambda = 800$  nm).
- Sur la Fig. 1.7(a), nous avons représenté les relations de dispersion calculées numériquement pour une épaisseur  $d$  allant de 10 nm à 70 nm. Lorsque celle-ci est très faible ( $d \leq 20$  nm), le couplage entre les modes à chaque interface air/or et or/verre augmentent. La distance de propagation des plasmons  $L_{SP}$  est également fortement diminuée (Fig. 1.7(b)). Ce régime est donc peu favorable à la propagation et à l'observation des plasmons de surface.
- Enfin, entre ces deux situations extrêmes, les modes plasmoniques évanescents dans l'air peuvent fuir de manière radiative dans le verre lorsque  $20$  nm  $\leq d \leq 70$  nm. L'évolution du champ magnétique plasmon traversant un film d'or d'épaisseur  $d=50$  nm est représentée sur la Fig. 1.7(c). A l'accord de phase, l'onde plasmonique est détectée dans le champ lointain pour angle spécifique  $\theta_{SP}$  (Eq. 1.36). Ainsi, lors de nos expériences, nos échantillons seront constitués d'une couche mince d'or d'épaisseur  $d = 50$  nm afin de

caractériser la propagation des plasmons de surface. Ce dernier paragraphe est consacré à la microscopie optique en champ proche. Cette technique permet notamment d'exciter directement les plasmons de surface, dans l'air et sans avoir recours à la structuration de réseaux sur l'échantillon.

#### 1.4.4 Microscopie champ proche optique

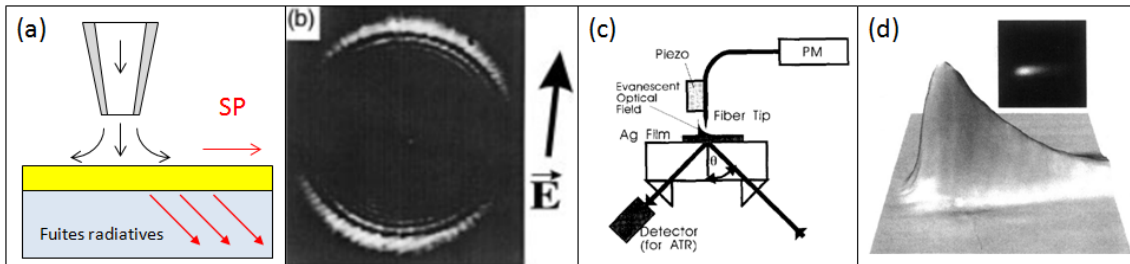


FIGURE 1.8 – (a) Illustration de la méthode utilisée dans pour exciter et enregistrer le signal plasmonique présenté en (b), image tirée de [19]. (c) Principe du PSTM et (d) mesure du signal plasmonique. Tirée de [20].

Du fait de leur caractère évanescent, les techniques de champ proche sont particulièrement adaptées pour l'excitation et l'observation des plasmons. Historiquement, l'idée de la microscopie optique en champ proche (*Scanning Near-field Optical Microscopy*, SNOM) a été proposée par E. Syngé en 1928. Afin de capturer des images d'objet de taille sub-longueur d'onde, il propose d'éclairer un échantillon par le biais d'un écran métallique dans lequel serait pratiquée une nano-ouverture. En scannant cet écran à une distance inférieure à la longueur d'onde de l'échantillon, ce dernier peut être imagé avec une résolution optique supérieure à la limite de diffraction. Les avancées technologiques apportées par l'invention, en 1982 par G. Binnig et H. Rohrer, du microscope à effet tunnel électronique (*Scanning Tunnelling Microscopy*, STM) ont rendu possible le développement technique des microscopes à sonde locale tels que SNOM et le microscope à force atomique (*Atomic Force Microscopy*, AFM).

En 1996, B. Hecht et al. rapporte l'excitation locale de plasmons de surface sur des films d'or et d'argent à partir une pointe SNOM à ouverture. L'expérience est illustrée sur la Fig. 1.8(a) : un film métallique est éclairé en champ proche par une sonde optique, entraînant l'excitation des plasmons qui sont collectés ensuite par imagerie LRM (Fig. 1.8(b)). Cette approche permet un couplage direct et local aux plasmons dans le régime des ondes évanescentes, sans l'intermédiaire de prisme ou de réseaux diffractifs.

Le principe général de la microscopie en champ proche à balayage repose sur l'utilisation d'une sonde optique, de taille sublongueur d'onde, amenée à une dizaine de nanomètres de la surface de l'échantillon. Celle-ci peut aussi être scannée pour réaliser une cartographie du champ proche optique. Historiquement, le microscope en champ proche optique a été développé pour atteindre des meilleures résolutions que les microscopes optiques traditionnels limités par la diffraction. On rappelle que

la limite de résolution optique des microscopes conventionnels, c'est à dire la capacité du système à distinguer deux points-sources, est déterminée par le critère de Rayleigh :

$$\Delta x = 0.61 \frac{\lambda}{NA}, \quad (1.39)$$

où  $NA = n \sin(\theta_{max})$  désigne l'ouverture numérique de l'objectif du microscope,  $n$  l'indice du milieu de travail et  $\theta_{max}$  l'angle maximum de collection. L'origine physique de ce critère est étroitement liée à la nature corpusculaire de la lumière, régie par le principe d'incertitude d'Heisenberg : il est impossible de connaître de façon simultanée et précise la position d'une particule et sa quantité de mouvement. A partir de ce principe, on retrouve notamment, à un facteur près, le critère de Rayleigh :

$$\Delta x \Delta \hbar k_x \geq \frac{\hbar}{2} \quad \Rightarrow \quad \Delta x \geq \frac{\lambda}{4\pi \cdot NA}, \quad (1.40)$$

où  $\Delta \hbar k_x = k_0 NA$  pour une onde propagative. Un moyen pour améliorer la résolution optique serait donc de maximiser  $k_x$ . A longueur d'onde et ouverture numérique donnée, on a  $k_0 = \sqrt{k_x^2 + k_y^2 + k_z^2}$ , c'est à dire qu'en travaillant dans le régime des ondes évanescentes pour lequel  $k_z^2 < 0$ , on peut atteindre des valeurs élevées de  $k_x$  soit une résolution sublongueur d'onde  $\Delta x$ .

Ainsi, les techniques de champ proche optique permettent d'atteindre des résolutions nanométriques et de mesurer des champs électromagnétiques confinés. Ils reposent sur l'utilisation d'une sonde optique, généralement constituée d'une fibre optique, dont l'extrémité a été effilée pour former une ouverture de diamètre inférieur à la longueur d'onde. Le SNOM existe selon deux modes de fonctionnement :

1. Mode illumination : Cette configuration a été mise au point par Pohl et al. en 1984 dans laquelle une sonde SNOM a été utilisée comme nano-source et a permis d'atteindre une résolution de  $\lambda/20$  dans le domaine spectral du visible (Fig. 1.8(a)). Dans le contexte de la plasmonique, une source quasi-ponctuelle permet de générer un spectre étendu de fréquences spatiales, dont les vecteurs d'onde sont suffisamment élevés pour exciter des plasmons. Étant donné que les ondes évanescentes associées ne se propagent pas, il est donc nécessaire d'amener cette sonde en champ proche de l'échantillon.
2. Mode détection : Dans ce cas, la sonde optique est utilisée comme nano-détecteur. Proposé pour la première fois en 1989 par R. Reddick et al. pour le *Photon Scanning Tunneling Microscopy* (PSTM) et D. Courçon et al. pour le *Scanning Tunneling Optical Microscope* (STOM), le principe repose sur l'effet tunnel optique dans lequel la sonde locale pénètre dans le champ évanescent d'un échantillon : le spécimen est éclairé en champ lointain en réflexion totale interne et l'intensité du champ proche est ensuite transmise à travers la fibre optique vers un détecteur. Par cette méthode, Dawson et al. [20] ont pu directement cartographier l'intensité des plasmons en balayant la sonde à une distance de quelques nanomètres au dessus de l'échantillon (Fig. 1.8(d)).



Avec la microscopie en champ proche, le couplage aux plasmons repose sur la capacité des sondes SNOM à émettre et à collecter localement les composantes évanescentes de la lumière, au voisinage proche du métal. Au cours de ce travail, nous utiliserons la première configuration, c'est à dire le SNOM en mode illumination, par exemple pour sonder la densité locale d'états optiques de structures chirales plasmoniques. Le dispositif expérimental ainsi que les sondes optiques seront détaillés dans le Chapitre 3.

## 1.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons établi les fondements théoriques ainsi que les propriétés optiques caractéristiques des plasmons de surface propagatifs, à partir desquelles se sont construits mes travaux de recherche. Nous avons montré que les plasmons de surface sont des modes de polarisation TM, qui peuvent se propager sur plusieurs dizaines de microns à la surface des métaux (dans le visible), mais sont évanescents perpendiculairement à l'interface. Ces spécificités, qui sont à l'origine de l'intérêt porté pour le domaine de la plasmonique, présentent aujourd'hui des applications concrètes, par exemple, dans le domaine de la biodétection. Basés sur la résonance des plasmons de surface, les biocapteurs [21] sont utilisés pour la caractérisation des interactions biomoléculaires [22] et sont aujourd'hui disponibles à l'échelle industrielle.

Un autre champ de recherche important concerne les circuits photoniques miniaturisés [23]. En effet, la plasmonique apparaît comme une solution potentielle pour augmenter l'intégration des systèmes optiques conventionnels. L'objectif est de combiner les bande-passantes élevées des réseaux optiques avec les architectures ultra-compactes de l'électronique. Le développement de cette technologie requiert, non seulement une compréhension approfondies des interactions lumière-matière à l'échelle nanométrique, mais également de pouvoir fabriquer des dispositifs capables d'exciter et détecter efficacement les plasmons de surface. Il nécessite également d'élaborer des dispositifs en mesure de les transmettre avec un minimum de pertes et de pouvoir manipuler le signal optique pour y encoder l'information [24]. Dans ce travail, nous visons notamment à exploiter les propriétés de la chiralité optique pour façonner les degrés de liberté de la lumière à l'aide nanostructures plasmoniques. Dans cette perspective, nous nous appuierons entre autres sur le couplage spin-orbite optique afin de contrôler les échanges entre les différents moments angulaires de la lumière.

# Chapitre 2

## Le couplage spin-orbite de la lumière

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>31</b>
<b>2.2</b>	<b>Notions d'interaction spin-orbite optique</b>	<b>32</b>
2.2.1	Moment angulaire de spin	32
2.2.2	Moment angulaire orbital	32
2.2.3	Effet spin Hall optique	34
<b>2.3</b>	<b>Excitation unidirectionnelle des plasmons de surface</b>	<b>36</b>
2.3.1	Contrôle unidirectionnel plasmonique	37
2.3.2	Contrôle radial des plasmons de surface	40
<b>2.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>41</b>

---

### 2.1 Introduction

Le couplage spin-orbite de la lumière désigne les processus au cours desquels la polarisation interagit fortement avec les degrés de liberté spatiaux de la lumière. Il permet de décrire la conversion entre les composantes de polarisation et impulsionnelles des photons. Historiquement introduit en mécanique pour décrire les mouvements de rotation, la lumière est également caractérisée par un moment angulaire qui peut se présenter sous deux formes :

1. le moment angulaire de spin  $\mathbf{S}$  ou SAM (*Spin Angular Momentum*) (Poynting, 1909).
2. le moment angulaire orbital  $\mathbf{L}$  ou OAM (*Orbital Angular Momentum*) (Allen, 1992).

Le sens de rotation d'un faisceau lumineux, de SAM et OAM non nul, lui confère un caractère chiral que l'on cherchera à générer et à caractériser, au sein de nanostructures métalliques.

Après avoir introduit ces différents moments angulaires, nous discuterons dans ce chapitre du couplage spin-orbite de la lumière avec une attention particulière sur l'effet spin Hall optique. Nous exposerons notamment les résultats majeurs obtenus

sur le sujet au cours de la thèse de Q. Jiang [6], et sur lesquels se sont basées mes recherches.

## 2.2 Notions d'interaction spin-orbite optique

### 2.2.1 Moment angulaire de spin

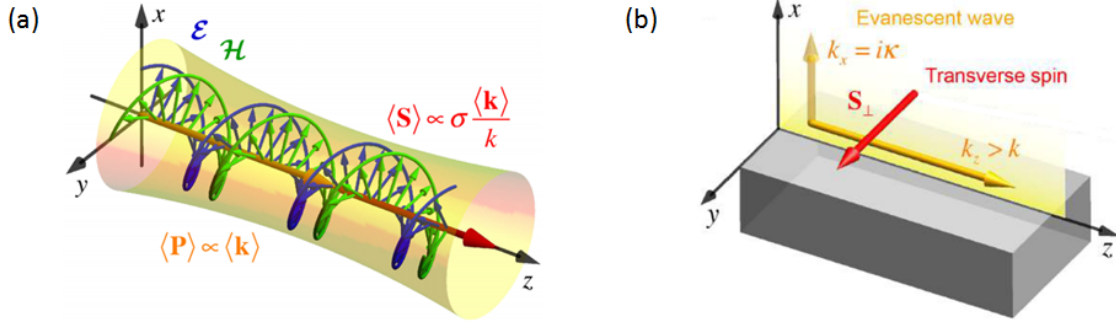


FIGURE 2.1 – (a) Représentation du SAM longitudinal transporté par une onde polarisée circulairement et se propageant selon  $Oz$ . (b) Représentation du SAM transverse, noté  $\mathbf{S}_\perp$ , transporté par une onde évanescente décroissante selon  $Ox$  et se propageant selon  $Oz$ . Tirées de [25].

Dans le modèle du photon, le SAM d'un photon unique, qui se propage selon la direction du vecteur d'onde  $\hat{k} = \mathbf{k}/|\mathbf{k}|$ , est donné par :

$$\mathbf{S} = s_\pm \hbar \hat{k} \quad \text{avec} \quad s_\pm = \pm 1. \quad (2.1)$$

Ainsi, le SAM peut prendre deux valeurs. Elles correspondent dans le régime classique aux états de polarisations circulaires gauche et droite, dont le sens de rotation est donné par  $s_\pm$ . D'une part, pour des ondes propagatives, le SAM est longitudinal, c'est à dire dirigé selon l'axe de propagation  $\hat{k}$  (Fig. 2.1(a)). D'autre part, mentionnons que le SAM transporté par des ondes évanescentes peut également posséder une composante transverse, comme illustrée sur la Fig. 2.1(b). Ce SAM transverse s'explique par la composante non-nulle du champ électrique selon  $\hat{k}$ . Enfin, pour transformer une polarisation linéaire (de SAM nul) en un faisceau de polarisation circulaire, on utilise traditionnellement une lame quart d'onde qui permet d'introduire un déphasage entre les deux composantes transverses  $E_x$  et  $E_y$  du champ électrique.

### 2.2.2 Moment angulaire orbital

Sur la Fig. 2.2(a), nous avons représenté une onde transportant un OAM non-nul. Pour produire un tel faisceau, il faut créer un déphasage qui varie spatialement avec l'angle azimutal  $\varphi$ . Le champ produit est alors décrit par une amplitude qui dépend de l'azimut selon :  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \varphi) = \mathbf{E}_0 e^{il\varphi}$ , où  $l$  est appelé la charge topologique. Ainsi, le photon associé à cette onde va transporter un OAM défini tel que :

$$\mathbf{L} = l\hbar \hat{k} \quad \text{avec} \quad l \in \mathbb{Z}. \quad (2.2)$$

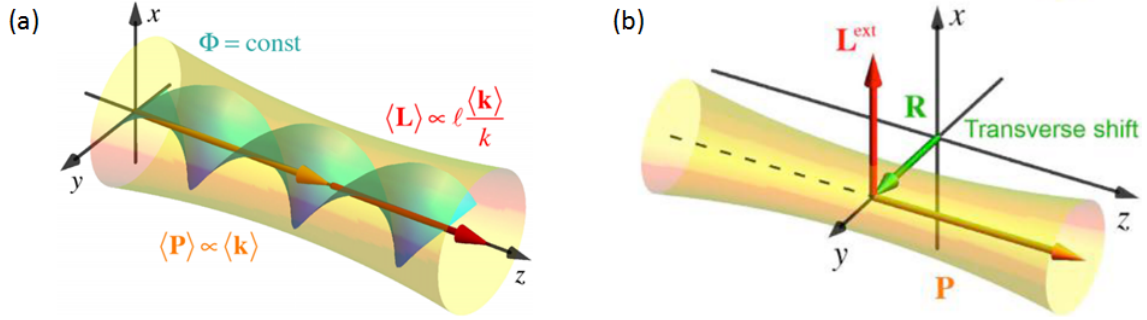


FIGURE 2.2 – Représentation d’une onde se propageant selon  $Oz$  et transportant (a) un OAM intrinsèque et (b) un OAM extrinsèque. Tirées de [25].

On désigne ces ondes de vortex optiques car elles présentent une singularité de phase à  $|\mathbf{r}| = 0$ . Elles sont caractérisées par un front d’onde hélicoïdal qui s’enroule autour de l’axe optique et dont la phase s’incrémente de  $2\pi l$  sur une période de  $\lambda$  (Fig. 2.3(a)). Cette singularité de phase se situe sur l’axe de rotation et se traduit par une intensité nulle au centre. Ainsi, les profils d’intensité, à une position  $z$  donnée, prennent la forme d’anneaux dont les rayons croissent avec  $|l|$ .

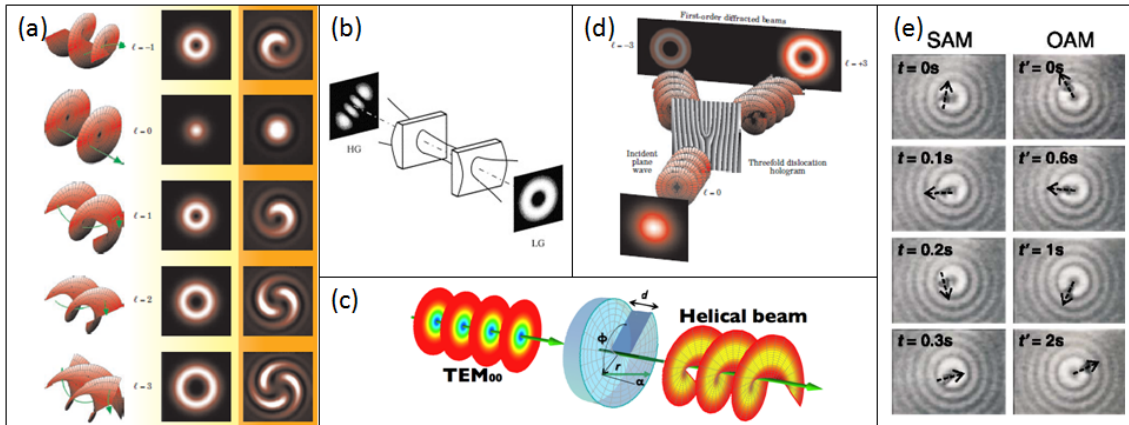


FIGURE 2.3 – (a) Représentation des fronts d’onde (première colonne), des intensités (deuxième colonne) et des phases (troisième colonne) associés à des vortex optiques de charges topologiques allant de  $l = -1$  à 3 (Tirées de [26]). (b-d) Techniques de génération de vortex optiques : (b) lentille cylindrique (Tirée de [27]), (c) lame de phase spirale (Tirée de Wikipédia) et (d) hologramme (Tirée de [26]). (e) Images présentant une particule de chlorure de mercure qui est mise en mouvement de rotation autour de son axe sous l’effet du SAM (colonne de gauche) et autour de l’axe optique du faisceau en raison du OAM (colonne de droite) (Tirée de [28]).

Décrivons quelques techniques permettant de structurer la phase d’une onde lumineuse. Sur la Fig. 2.3(b), nous présentons une méthode basée sur l’utilisation de lentilles cylindriques pour transformer des modes Hermite-Gaussien  $HG_{mn}$ , de OAM nul, en des modes Laguerre-Gaussien  $LG_{lp}$  de phase hélicoïdale [27]. L’inconvénient de cette technique est qu’elle est très sensible à toutes erreurs d’alignement

et qu'elle nécessite, en entrée, une source capable de produire un large spectre de modes  $HG$ . Elle requiert également que les lentilles cylindriques soient de haute qualité. Sur la Fig. 2.3(c), on présente une autre approche basée sur une lame à phase spirale. Celle-ci permet de générer des vortex optiques en appliquant une différence de phase à une onde plane incidente. Ce composant est formé d'un disque d'indice de réfraction homogène mais dont l'épaisseur  $d$  varie de manière hélicoïdale selon  $d(\varphi) = d_0 + d_{2\pi} \frac{\varphi}{2\pi}$ , avec  $d_0$  l'épaisseur minimum et  $d_{2\pi}$  l'incrément d'épaisseur au bout de  $2\pi$ . Toutefois l'inconvénient de ces optiques est que la variation d'épaisseur doit être extrêmement régulière et contrôlée à la longueur d'onde près. De plus, elles ne sont pas modulaires car une lame différente doit être utilisée pour chaque ordre  $l$  et pour chaque longueur d'onde de travail. La manière la plus répandue pour créer des vortex optiques est l'utilisation d'un hologramme, généré par un modulateur spatial de lumière (*Spatial Light Modulator*, SLM) (Fig. 2.3(d)). Ces derniers sont constituées de cristaux liquides capables de créer n'importe quel motif holographique. La figure holographique est calculée en faisant interférer une onde plane avec un faisceau vortex. Elle se présente sous la forme d'un réseau de diffraction avec une dislocation au centre qui est à l'origine de la singularité optique. Lorsque l'hologramme est éclairé par une onde plane, les premiers ordres de diffraction  $\pm 1$  produisent alors des ondes de moment angulaire  $\pm l$ . L'avantage de cette technique est qu'elle permet de modifier à volonté l'amplitude et la phase d'une onde pour produire le vortex optique voulu.

Depuis les travaux pionniers de Allen et al. sur les vortex optiques [26], de nombreuses études ont été menées dans la manipulation du moment angulaire orbital, offrant des perspectives intéressantes pour le multiplexage optique et le piégeage optique [4]. Par exemple, de la même manière que le SAM peut être transféré à une particule sous forme de rotation sur elle-même, celle-ci peut être mise en mouvement autour de l'axe optique par l'intermédiaire du OAM, comme illustré sur la Fig. 2.3(e) [28].

Il est à préciser que le moment angulaire orbital ainsi défini est désigné de OAM intrinsèque par opposition au OAM extrinsèque. En effet, le SAM et le OAM discutés ci-dessus sont indépendants du référentiel choisi, à la différence du OAM extrinsèque, noté  $\mathbf{L}_{ext}$ . Ce dernier dépend explicitement du repère de travail et il est associé à une modification de la trajectoire globale du faisceau (voir Fig. 2.2(b)). Il est défini comme suit :  $\mathbf{L}_{ext} = \mathbf{R} \wedge \mathbf{P}$ , avec  $\mathbf{R}$  la position transverse du faisceau et  $\mathbf{P}$  la quantité de mouvement.

Finalement, le moment angulaire total d'une onde lumineuse est donné par :  $\mathbf{J} = \mathbf{S} + \mathbf{L} + \mathbf{L}_{ext}$ . Pour un système invariant par rotation autour de l'axe  $Oz$ , la composante du moment angulaire total sur cet axe doit être conservée mais des échanges entre ces différents degrés de liberté peuvent se produire.

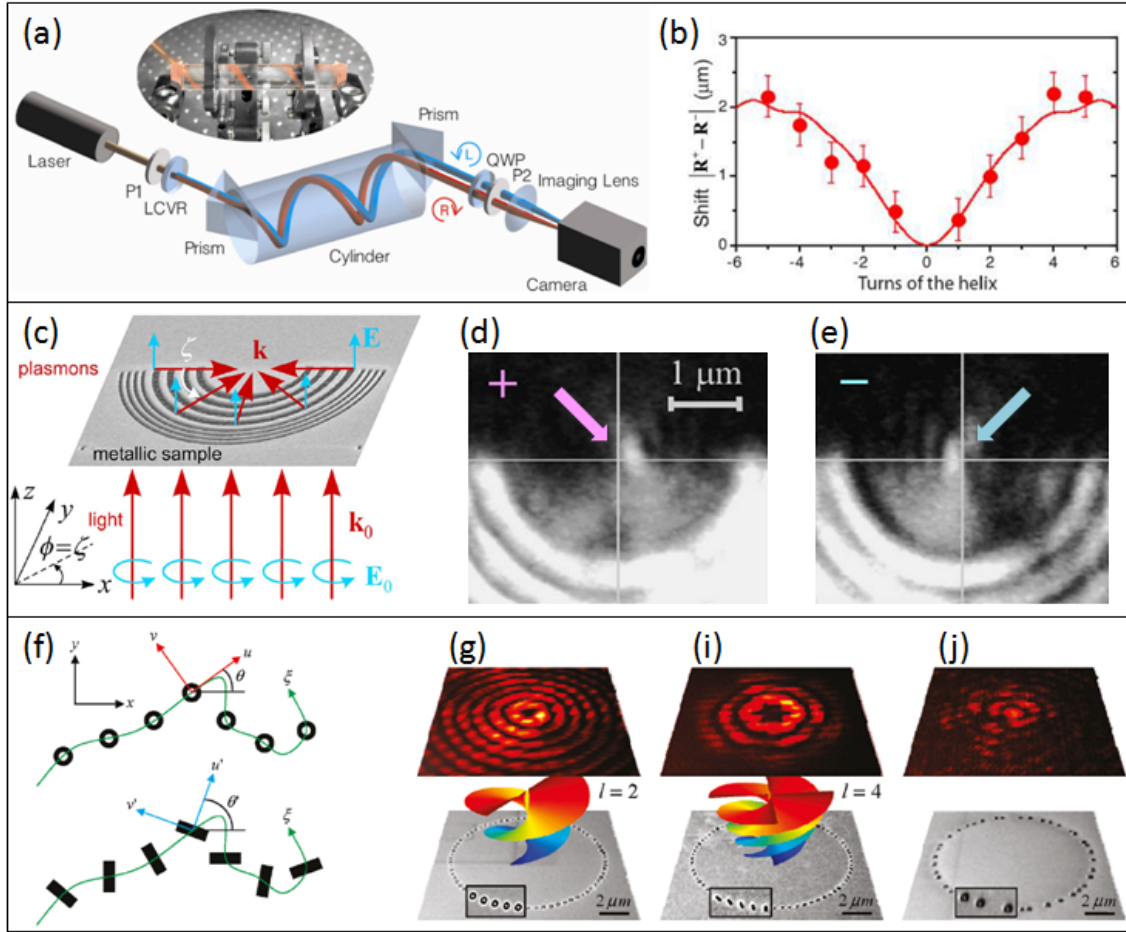


FIGURE 2.4 – (a) Montage optique démontrant l’effet spin Hall pour une propagation curviligne de la lumière. (b) Mesures du décalage spatial entre les faisceaux de polarisation circulaire droite et gauche en fonction du nombre de tours effectués par la lumière. Tirées de [29]. (c) Schéma de l’expérience mettant en évidence l’effet spin Hall appliqué aux plasmons de surface. (d-e) La variation spatiale du point de focalisation en fonction de la polarisation circulaire (+, -) est mesurée en microscopie champ proche. Tirées de [30]. (f) Illustration d’une chaîne plasmonique localement isotropique (figure supérieure) et anisotropique (figure inférieure). Mise en évidence dans le plan de Fourier de l’effet spin Hall optique local (g) isotropique et (i) anisotropique. L’influence de l’interaction collective des plasmons est vérifiée en comparant le système (g) et (j) où les nanostructures sont disposées de manière désordonnée. Tirées de [31].

### 2.2.3 Effet spin Hall optique

Lorsqu’on travaille dans le régime de l’optique géométrique, les différentes composantes du moment angulaire de la lumière peuvent être traitées indépendamment. A l’inverse, dans les milieux inhomogènes, non-paraxiaux et spécifiquement en nano-optique, ces différents degrés de liberté peuvent être fortement couplés. Le phénomène de spin Hall optique (*Spin Hall Effect of Light*, SHEL) désigne notamment l’influence mutuelle de la polarisation sur la trajectoire des photons. Sur la

Fig. 2.4, nous présentons, de manière non-exhaustive, quelques exemples de travaux clés qui démontrent expérimentalement l'effet SHEL. Dans l'expérience illustrée sur la Fig. 2.4(a), Bliokh et al. ont utilisé un cylindre présentant un gradient d'indice radial pour conférer une trajectoire curviligne, soit un moment angulaire extrinsèque non nul, à deux faisceaux lumineux de polarisation circulaire droite et gauche [29]. Après plusieurs rotations des faisceaux autour de l'axe de propagation, la signature de l'effet SHEL se manifeste comme un décalage spatial entre les deux ondes (Fig. 2.4(b)).

Dans le domaine de la plasmonique, ce même groupe a démontré le couplage spin-orbite par l'intermédiaire d'un réseau périodique semi-circulaire, agissant comme une lentille pour plasmons [30] (Fig. 2.4(c)). Après avoir éclairé ce système avec une onde de polarisation circulaire, ils ont mesuré en microscopie optique en champ proche un déplacement du point de focalisation des plasmons en fonction du SAM incident (Fig. 2.4(d,e)). Enfin, en manipulant non seulement la disposition mais également la géométrie de nanostructures métalliques (Fig. 2.4(f-j)), Shirit et al. ont démontré qu'une anisotropie locale permettait de contrôler le moment angulaire de la lumière à l'aide d'un degré de liberté supplémentaire [31]. Ainsi, ces études portant sur les interactions spin-orbite dans les systèmes plasmoniques ont ouvert la voie à d'importants travaux sur la chiralité pour le maniement des différents degrés de liberté de la lumière.

## 2.3 Excitation unidirectionnelle des plasmons de surface

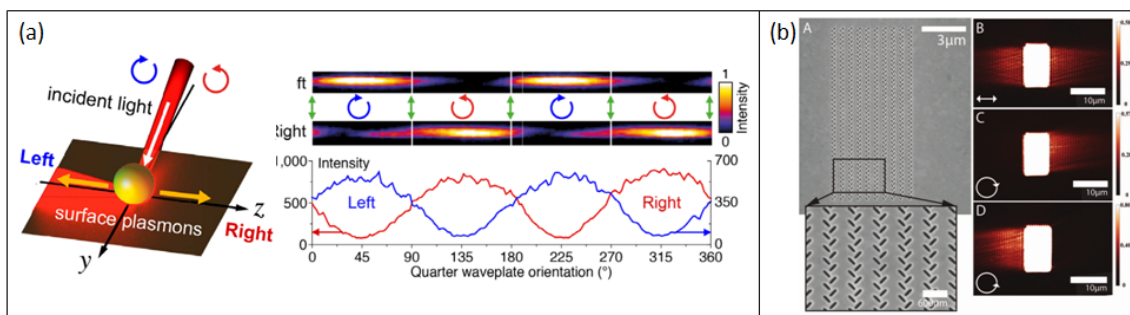


FIGURE 2.5 – (a) Exemple de verrouillage du moment de spin transverse. Tirées de [32]. (b) Excitation unidirectionnelle de plasmons de surface par le biais de métasurfaces. Tirées de [33].

De nombreuses recherches ont tiré partie du couplage spin-orbite afin "d'aiguiller" la lumière à l'aide du spin à l'échelle nanométrique. Par exemple, O'Connor et al. ont démontré, dans le domaine de la plasmonique, le phénomène de verrouillage du moment de spin (*Spin-Momentum Locking*), un mécanisme engendré par l'interaction entre la direction de propagation et le spin transverse [32] (Fig 2.5(a)).

Dans cette partie, nous revenons sur le processus à l'origine de la directionnalité plasmonique générée par des nano-ouvertures en forme de  $T$  et  $\Lambda$ . De tels systèmes ont suscité un intérêt important du fait de leur capacité à contrôler la phase, la polarisation et la directivité de la lumière [34, 35, 36]. Ainsi, les chercheurs ont montré que les nanostructures plasmoniques pouvaient orienter le rayonnement électromagnétique dans une direction spécifique, de la même manière que les antennes classiques.

Lorsqu'on éclaire fente pratiquée dans un film métallique, elle induit un dipôle électrique dont l'orientation est principalement alignée selon la normale à cette fente [37]. Dans cette configuration, le faisceau plasmonique est donc contraint de se propager dans la direction perpendiculaire aux fentes. Seule la composante perpendiculaire du champ incident peut alors se coupler efficacement aux plasmons et l'information sur ses autres composantes de polarisation est alors perdue lors du couplage. En structurant le métal de nano-ouvertures, avec une distance de séparation entre chaque élément judicieusement choisie, on peut contrôler la directionnalité des plasmons par interférences constructives et destructives. Par exemple, Lin et al. ont notamment introduit une antenne plasmonique ayant la capacité à diriger les plasmons dans deux directions opposées, vers la droite ou vers la gauche selon le spin de la lumière incidente [33]. Comme présentée sur la Fig 2.5(b), cette méta-surface est formée d'un réseau constitué de nano-bâtonnets en forme de  $T$  et a été caractérisé au moyen d'une sonde en champ proche.

### 2.3.1 Contrôle unidirectionnel plasmonique

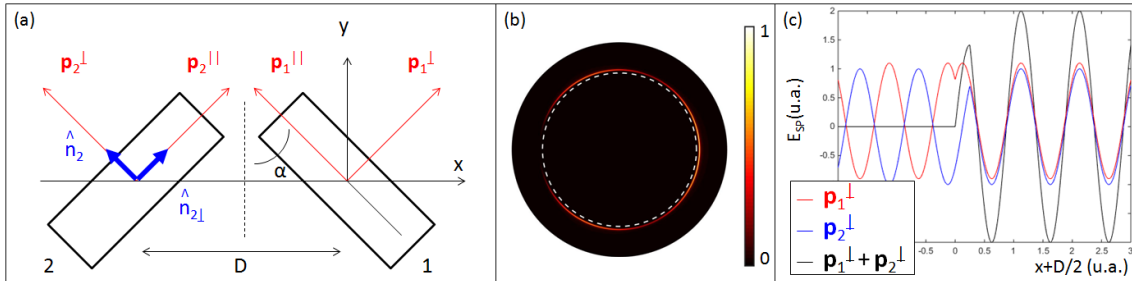


FIGURE 2.6 – (a) Schéma d'une nanostructure  $\Lambda$ . (b) Simulation de l'image LRM dans le plan de Fourier : signal plasmonique généré par un  $\Lambda$  unique excité par une onde incidente polarisée circulairement de spin  $s = -1$ . Cercle plasmonique de rayon  $k_{SP}$  (pointillé). Echelle de couleur : Intensité (u.a.). (c) Simulation du champ plasmonique généré par la fente 1 (courbe bleue), la fente 2 (courbe rouge) et le champ total (courbe noire).

Dans la continuité de ces travaux, mon prédécesseur Q. Jiang a proposé durant son doctorat d'utiliser l'imagerie LRM pour caractériser ces coupleurs unidirectionnels. C'est un projet auquel j'ai été impliquée au début de ma thèse. En travaillant en espace libre, la méthode LRM nous a permis de réaliser des analyses quantitatives sur la polarisation et la propagation des plasmons dans l'espace réciproque. Dans le prolongement de ce travail, le design des échantillons ainsi que le modèle analytique



que j'ai utilisé au cours de ma thèse se sont appuyées sur ces études. En particulier, nous nous sommes intéressés à deux types de nanostructures, des nanorectangles disposés en  $\Lambda$  et en  $T$ , dont je vais rappeler ici les résultats principaux. Le détail des analyses peuvent être trouvé dans [38, 39, 6].

### Nanostructures en forme de $\Lambda$

Considérons une nanostructure en forme de  $\Lambda$  (Fig. 2.6(a)). Elle est constituée de deux rectangles ( $m = 1, 2$ ), faisant un angle  $\alpha$  par rapport à  $Oy$ . Le centre de chaque élément est situé respectivement à  $\mathbf{r}_1 = (0, 0)$  et  $\mathbf{r}_2 = (-D, 0)$ . Les normales respectives au grand ( $\hat{n}_m$ ) et au petit axe ( $\hat{n}_{m\perp}$ ) des rectangles sont données par :

$$\hat{n}_1 = \begin{pmatrix} \cos \alpha \\ \sin \alpha \end{pmatrix} \quad ; \quad \hat{n}_{1\perp} = \begin{pmatrix} -\sin \alpha \\ \cos \alpha \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

$$\hat{n}_2 = \begin{pmatrix} -\cos \alpha \\ \sin \alpha \end{pmatrix} \quad ; \quad \hat{n}_{2\perp} = \begin{pmatrix} \sin \alpha \\ \cos \alpha \end{pmatrix} \quad (2.4)$$

Ce système est éclairé par une onde polarisée circulairement  $\mathbf{E}_s = (\hat{x} + is\hat{y})/\sqrt{2}$ , avec  $s = -1$  pour une rotation à droite et  $s = +1$  pour une rotation à gauche. Les plasmons de surface induits par chaque fente  $m$  sont associés aux moments suivants :

$$\mathbf{p}_{m,s} = \mathbf{p}_{m,s}^\perp + \mathbf{p}_{m,s}^\parallel = (\mathbf{E}_s \cdot \hat{n}_m)\hat{n}_m + \beta(\mathbf{E}_s \cdot \hat{n}_{m\perp})\hat{n}_{m\perp}, \quad (2.5)$$

où  $\beta$  ( $0 \leq \beta < 1$ ) est une grandeur qui décrit la contribution relative entre le dipôle associé au grand axe  $\mathbf{p}_{m,s}^\perp$  et le dipôle associé au petit axe de la fente  $\mathbf{p}_{m,s}^\parallel$ .

Dans cette étude, les plasmons ont été imagés dans le plan de Fourier par imagerie LRM. Dans l'espace réciproque, la résonance plasmonique peut être décrite par une distribution de la forme  $F_{SP}(k) \simeq 1/(k - k_{SP})$  [18]. Comme nous le verrons par la suite, l'intensité plasmonique se situe sur un cercle de rayon  $k = k_{SP}$  et présente un signal piqué dont le profil suit une fonction Lorentzienne (voir Fig. 2.6(b)) [40, 41]. Le champ plasmonique induit dans la direction de propagation  $\hat{k}_{x\pm} = \pm\hat{x}$  s'écrit alors :

$$\mathbf{E}_{s,\pm}^{SP}(k) = F_{SP}(k)[(\mathbf{p}_{1,s} \cdot \hat{k}_{x\pm}) + (\mathbf{p}_{2,s} \cdot \hat{k}_{x\pm})e^{\pm ik_{SP} \cdot D}] \cdot \hat{k}_{x\pm}, \quad (2.6)$$

où  $k$  fait ici référence à la composante planaire du vecteur d'onde. Cette expression qui lie la polarisation circulaire incidente  $\mathbf{E}_s$  (Eq. 2.5) à la direction de propagation  $\hat{k}_{x\pm}$  est une signature du couplage spin-orbite induit par les nanostructures.

### Condition de directionnalité

Le facteur de phase ( $k_{SP} \cdot D$ ) dans l'Eq. 2.6 détermine la directivité des plasmons. Si la distance  $D$  est choisie telle que  $k_{SP} \cdot D = \pi/2$ , alors les champs plasmoniques induits par chaque fente vont interférer constructivement dans une direction, et destructivement dans la direction opposée (Fig. 2.6(c)). Dans ce cas, l'Eq 2.6 se réécrit comme suit :

$$\mathbf{E}_{s,\pm}^{SP}(k) = \pm \frac{F_{SP}(k)}{\sqrt{2}} \cos^2(\alpha) \cdot C_{s,\pm} \cdot \hat{k}_{x\pm}, \quad (2.7)$$

où nous avons introduit le facteur de directivité  $C_{s,\pm}$ . Ce paramètre caractérise le couplage du champ incident polarisé circulairement  $s = \pm 1$  en plasmons directs selon la direction  $\hat{k}_{x\pm}$ . Il est donné par :

$$C_{s,\pm} = 1 \pm s \tan \alpha + (s \tan \alpha \pm 1)i + \beta[1 \mp s \tan \alpha - (s \tan \alpha \mp 1)i]. \quad (2.8)$$

Notons la dépendance de la directivité avec les paramètres géométriques de l'ouverture  $\Lambda$ . En ajustant l'angle  $\alpha$  et le facteur  $\beta$ , nous pouvons optimiser la directionnalité des plasmons. Cependant, le paramètre  $\beta$ , qui tient compte de la largeur finie des fentes, est en pratique fixé lors de la gravure des nanostructures par faisceau d'ions focalisés. Pour nos échantillons, nous avons déterminé une valeur moyenne de  $\langle \beta \rangle = 0.51$  [38]. Toutefois nous pouvons ajuster l'angle  $\alpha$ . Nous avons notamment montré que pour cette valeur de  $\beta$ , la directivité est nominale si l'angle est de  $\alpha = 60^\circ$ .

### Nanostructure en forme de $T$

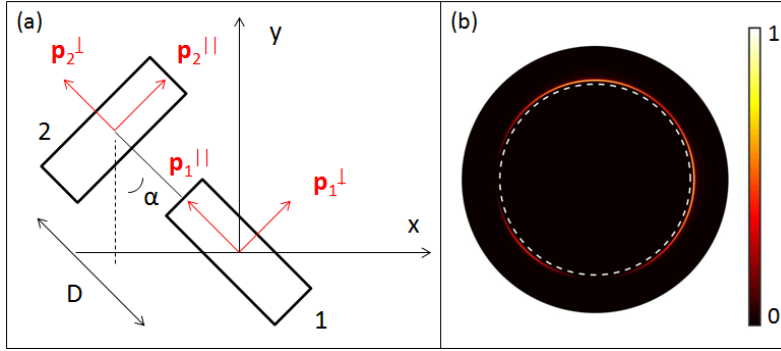


FIGURE 2.7 – (a) Schéma d'une nanostructure  $T$ . (b) Simulation dans le plan de Fourier par imagerie LRM : intensité plasmonique générée par un  $T$  unique.

Lorsque les nano-bâtonnets sont arrangés en  $T$  (Fig. 2.7(a)), la condition de directionnalité s'écrit :  $k_{SP} \cdot D/\sqrt{2} = \pi/2$ . En effectuant le même raisonnement que précédemment, nous obtenons l'expression du facteur de directivité plasmonique suivante :

$$C_{s,\pm} = 1 \pm s + (s \pm 1)i + \beta[1 \mp s - (s \mp 1)i], \quad (2.9)$$

où  $\mathbf{r}_1 = (0, 0)$ ,  $\mathbf{r}_2 = (-D/\sqrt{2}, D/\sqrt{2})$  et  $\alpha = 45^\circ$ .

### Métasurface : Unidirectionnalité selon $\hat{x}$

Jusqu'à maintenant, nous n'avons considéré qu'un seul élément,  $\Lambda$  ou  $T$ , et la direction de propagation  $\hat{k}_x = \pm \hat{x}$ . Or, nous pouvons voir sur les Fig. 2.6(b) et Fig. 2.7(b) que l'excitation d'une structure unique excite également des plasmons se propageant dans la direction  $\hat{k}_y = \pm \hat{y}$ . Afin de générer des plasmons dans une seule direction, les nanostructures ont été disposées en réseau (Fig. 2.8(a),(d)). Pour favoriser l'unidirectionnalité selon  $k_x$ , nous avons fixé la période horizontale à  $a_x = \lambda_{SP}$  afin que

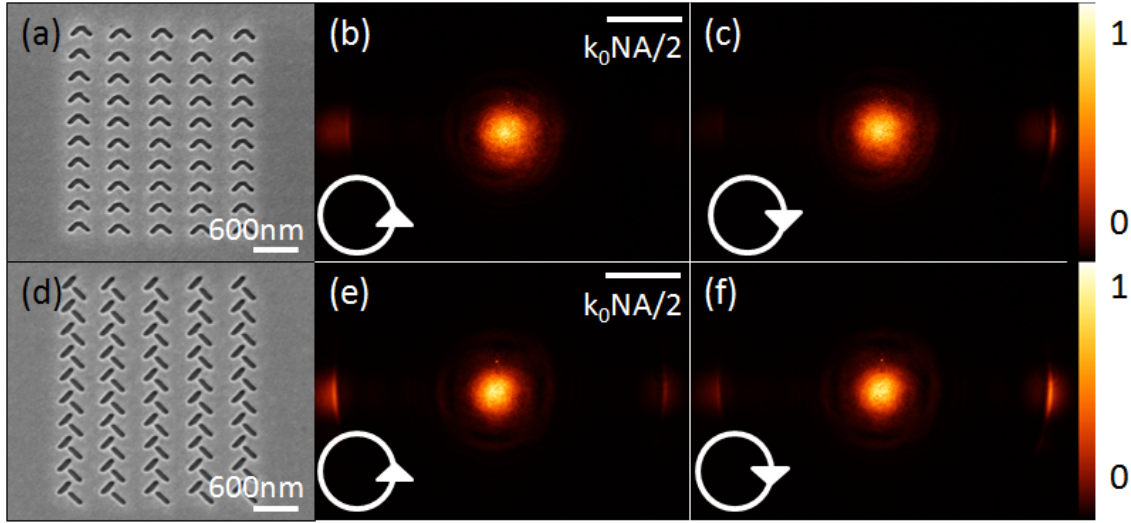


FIGURE 2.8 – (a) Image SEM d’un réseau formé de nanostructures  $\Lambda$  (respectivement, (b) nanostructures  $T$ ). (b-c) (resp., (e-f)) Images LRM dans le plan de Fourier lorsque l’échantillon est excité par une polarisation circulaire comme indiquée par la flèche blanche. Echelle de couleur : Intensité (u.a).

les plasmons puissent interférer constructivement. À l’inverse, pour avoir des interférences destructives selon  $k_y$ , la période verticale a été choisie telle que  $a_y = \lambda_{SP}/2$ . Les résultats expérimentaux sont présentés sur la Fig. 2.8 : premièrement, de part et d’autre du spot central qui correspond à la transmission directe du laser, on constate que les plasmons sont lancés soit vers la droite, soit vers la gauche selon que l’échantillon ait été illuminé avec une polarisation circulaire droite ou gauche. Deuxièmement, la mise en réseau des nano-ouvertures a effectivement permis de supprimer la génération de plasmons selon la direction  $\hat{k}_y$ .

### 2.3.2 Contrôle radial des plasmons de surface

Enfin, sur la Fig. 2.9, les nanostructures  $\Lambda$  ou  $T$  sont disposées en forme de cercle dans le but d’obtenir une émission radiale et directionnelle des plasmons. Le signal plasmonique est ici étudié dans le plan direct et nous négligerons  $\beta$  pour simplifier la discussion. Pour calculer l’intensité totale, nous sommes le champ plasmons émis par chaque nanostructure. Les échantillons sont illuminés en polarisation circulaire et le champ électrique plasmonique résultant s’écrit dans le système de coordonnées radiales  $(O, \hat{\rho}, \hat{\theta})$  (voir Fig. 2.9(a) pour les notations) de la manière suivante :

$$\mathbf{E}_s^{SP}(M) \propto \sum_{j=0,1\dots N} \frac{e^{i\mathbf{k}_{SP}\cdot\mathbf{r}_1}}{\sqrt{r_1}} (\mathbf{p}_{1,s} \cdot \hat{r}_1) \hat{r}_1 + \frac{e^{i\mathbf{k}_{SP}\cdot\mathbf{r}_2}}{\sqrt{r_2}} (\mathbf{p}_{2,s} \cdot \hat{r}_2) \hat{r}_2, \quad (2.10)$$

avec  $N$  le nombre total de structures comprises dans un cercle et  $r_i$  ( $i=1, 2$ ) la distance entre le point d’observation  $M$  et chaque fente 1 et 2. Notons que le rayon  $R$  du cercle est bien supérieur à la distance entre les fentes ( $D$ ) et à la période entre 2 structures ( $\Lambda_\theta$ ). Nous avons donc fait l’approximation que  $\hat{r}_1 \approx \hat{r}_2 \approx \hat{\rho}$ . En transformant la somme discrète en une intégrale, nous avons trouvé que le signal

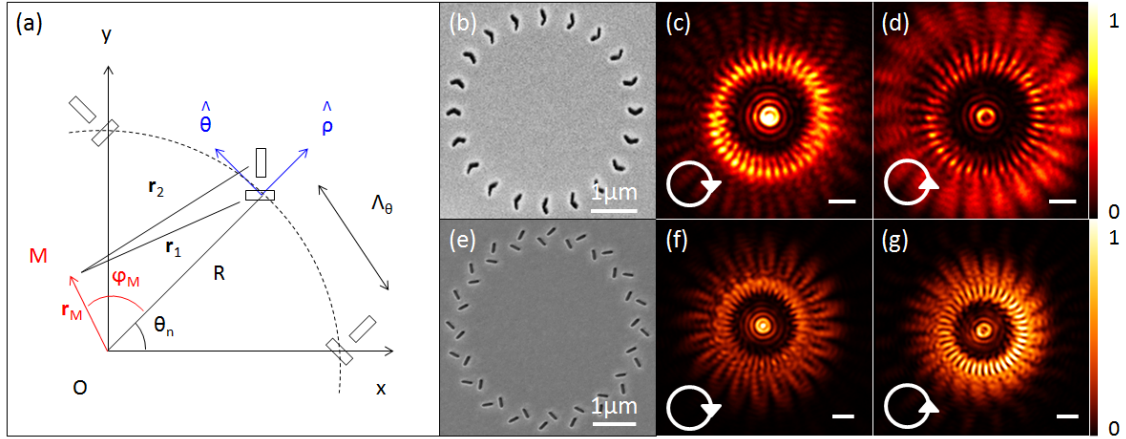


FIGURE 2.9 – (a) Notations adoptées pour des nanostructures en  $T$  arrangées en cercle. Images SEM d'un cercle formé de nanostructures (b)  $\Lambda$  et (e)  $T$ . Images dans le plan de direct pour une excitation  $s = +1$  (b,e) et  $s = -1$  (c, f). Barre d'échelle :  $k_0 N.A/4$ . Echelle de couleur : Intensité (u.a).

plasmonique émis vers le centre de cercle est décrit par :

$$\mathbf{E}^{SP}(M) \propto C_s \{ (-e^{i\theta_M})^{s+1} J_{s+1}(k_{SP} r_M) \mathbf{E}_{-1} + (-e^{i\theta_M})^{s-1} J_{s-1}(k_{SP} r_M) \mathbf{E}_{+1} \}, \quad (2.11)$$

où  $J_l$  correspond à la fonction de Bessel d'ordre  $l$ . Finalement, le facteur de directivité  $C_s$  est défini par :

$$C_s = (n_1^x + i s n_1^y) n_1^x + (n_2^x + i s n_2^y) n_2^x e^{i k_{sp} D / \sqrt{2}}. \quad (2.12)$$

Cette grandeur décrit la faculté du système à concentrer les plasmons vers le centre. Comme précédemment, il dépend des paramètres géométriques des structures et du champ incident. En particulier, nous avons trouvé, pour les systèmes présentés sur les Fig. 2.9(b) et (e), l'inégalité :  $C_{-1} \ll C_{+1}$ . Cela se traduit expérimentalement par un maximum d'intensité plasmonique au centre pour une excitation suivant  $s = +1$  et un minimum pour  $s = -1$ .

## 2.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons abordé la chiralité de lumière à travers ses moments angulaires de spin et orbitaux. L'étude des couplages spin-orbite optiques dans les systèmes plasmoniques suggèrent le développement de nouvelles fonctionnalités optiques, grâce la manipulation des degrés de polarisations et spatiaux de la lumière. En particulier, nous avons présenté comment des nanostructures en forme de  $T$  et  $\Lambda$  pouvaient transmettre l'information sur la SAM incident dans la trajectoire des plasmons.

Afin de mettre en évidence les effets chiroptiques dans les systèmes plasmoniques, il est nécessaire de pouvoir contrôler et caractériser les plasmons de surface ainsi que la polarisation. Pour cela, nous avons adopté au cours de cette thèse différentes

approches expérimentales, basées sur l'imagerie en champ lointain (LRM) et en champ proche (SNOM), que nous allons détailler dans le chapitre qui suit.

# Chapitre 3

## Techniques expérimentales

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>43</b>
<b>3.2</b>	<b>Fabrication des échantillons</b>	<b>44</b>
3.2.1	Dépôt de couches minces métalliques	44
3.2.2	Gravure par FIB	45
<b>3.3</b>	<b>Montage 1 : Excitation plasmonique en champ lointain</b>	<b>46</b>
3.3.1	Description du dispositif	46
3.3.2	Système d'imagerie	47
<b>3.4</b>	<b>Tomographie en polarisation : formalismes de Jones et Mueller</b>	<b>50</b>
3.4.1	Vecteurs et matrices de Jones	50
3.4.2	Vecteur de Stokes et matrice de Mueller	52
3.4.3	Matrice de Mueller-Jones	53
<b>3.5</b>	<b>Montage 2 : Le champ proche optique pour l'excitation des plasmons de surface</b>	<b>54</b>
3.5.1	Régulation de la distance sonde-échantillon	54
3.5.2	Système d'imagerie	56
3.5.3	Fabrication des sondes locales optiques	62
<b>3.6</b>	<b>Conclusion</b>	<b>68</b>

---

### 3.1 Introduction

Du fait de leur nature évanescence, travailler avec les plasmons de surface nécessite de mettre en œuvre des outils adaptés pour leur excitation et leur observation. Ce chapitre présente les techniques expérimentales utilisées pour l'élaboration et la caractérisation des échantillons. D'une part, je décrirai dans une première partie le protocole fabrication des échantillons, du dépôt du film métallique à la gravure des nanostructures plasmoniques par faisceau d'ions focalisés. D'autre part, je présenterai les deux montages optiques utilisés au cours de ce travail, qui se distinguent notamment par leur mode d'illumination des échantillons. Dans le cadre de cette

thèse nous cherchons à étudier les phénomènes de chiralité optique au sein de systèmes plasmoniques, par conséquent, pouvoir sonder leur réponse en polarisation est essentiel. Un premier montage d'illumination en champ lointain nous permettra de contrôler l'état de polarisation incident et de générer des ondes plasmoniques par le biais d'éléments diffractifs. La deuxième partie de ce chapitre sera donc consacrée à la description de ce montage, mis en œuvre au laboratoire durant la thèse de Q. Jiang [6]. Enfin, je présenterai dans une troisième partie le microscope optique en champ proche SNOM destiné à l'excitation locale des systèmes plasmoniques. Une attention particulière sera accordée à la fabrication des sondes locales, notamment des pointes optiques à ouvertures et des sondes actives utilisées au cours de ce projet.

## 3.2 Fabrication des échantillons

Les échantillons sont élaborés au sein de l'Institut Néel. Le protocole comprend deux grandes étapes : d'une part, la réalisation d'un film mince métallique, support de propagation des plasmons de surface, d'autre part, la structuration par faisceau d'ions focalisés (*Focused Ion Beam*, FIB) des échantillons. Cette deuxième étape ainsi que les images MEB des échantillons ont été réalisées par G. Julie et J. -F. Motte du pôle Nanofab. Dans cette section, je décris brièvement le protocole de fabrication des nanostructures plasmoniques, dont la méthode a été mise en place et optimisée depuis plusieurs années au sein du laboratoire.

### 3.2.1 Dépôt de couches minces métalliques

La qualité des échantillons est non seulement conditionnée par la précision de gravure des nanostructures, mais également par l'homogénéité du film métallique sur lequel elles ont été gravées. Afin de limiter la présence d'impuretés, qui pourraient augmenter la rugosité de la surface et diminuer la distance de propagation des plasmons, les échantillons doivent être nettoyés avec soin. Les nanostructures sont élaborées sur un substrat de verre BK7 d'épaisseur 0.2 mm. La propreté du substrat est assurée par un nettoyage préalable à éthanol puis à l'acétone dans un bain à ultrason. Une deuxième étape de nettoyage consiste à évacuer les contaminants organiques par gravure ionique réactive (*Reactive-Ion Etching*, RIE). La méthode repose sur un plasma d'ions oxygène interagissant chimiquement avec les impuretés, qui sont ensuite pulvérisées de la surface du substrat puis évacuées.

L'étape suivante est la métallisation du substrat par dépôt physique en phase gazeuse. La technique consiste à bombarder, avec un faisceau d'électrons, un creuset contenant le métal à déposer jusqu'à son évaporation<sup>1</sup>. Dans le cadre de notre étude, l'or est utilisé car c'est un matériau qui s'oxyde lentement, garantissant ainsi un état de surface durable et stable dans le temps. Les électrons sont émis par un filament de tungstène chargé puis sont accélérés à énergie cinétique élevée en direction du creuset. Le métal se vaporise puis se condense sous forme d'une couche mince sur la surface plus froide du substrat, positionné au dessus du creuset. Le dépôt se fait

---

1. Modèle PLASSYS

à basse pression ( $10^{-6}$  Torr) afin de limiter les impuretés dans la chambre. Afin de faciliter l'adhérence du métal sur le verre, une épaisseur de 3 nm de titane est préalablement déposée entre le substrat et l'or. L'épaisseur de métal, contrôlée au moyen d'une balance à quartz, est choisie selon les besoins de l'étude : le film sera de 200 nm dans le cas d'un découplage des plasmons par diffraction, et de 50 nm pour une caractérisation par imagerie LRM. Cette méthode de dépôt nous permet de fabriquer des films homogènes dont la faible rugosité permet aux plasmons de se propager sur une distance pouvant atteindre une dizaine de micromètres, comme nous le verrons par la suite.

### 3.2.2 Gravure par FIB

Une fois le dépôt d'or réalisé, nous procédons à la gravure FIB des nanostructures. Cette étape est réalisée par l'équipe Nanofab. Au laboratoire, la source FIB<sup>2</sup> est intégrée à un microscope électronique à balayage<sup>3</sup> (*Scanning Electron Microscope*, SEM), qui permet d'imager l'échantillon au cours de la gravure. La technique consiste à graver les matériaux à l'aide d'un faisceau d'ions gallium ( $\text{Ga}^+$ ) focalisés à haute énergie sur l'échantillon. Cette méthode présente l'avantage de structurer directement le matériau, sans l'intermédiaire de résine ou d'attaque chimique. Le faisceau est produit par une pointe de tungstène mouillée de gallium. Soumise à un courant élevé, un champ électrique important au bout de la pointe ionise les molécules de gallium qui sont ensuite accélérées et focalisées sur l'échantillon par des lentilles électrostatiques. L'énergie des ions est alors suffisamment élevée (30keV) pour générer une ablation du matériau. Cette méthode directe d'abrasion permet la gravure de motifs complexes de taille nanométrique avec une grande flexibilité.

Pour garantir la qualité des nanostructures, les paramètres du FIB ont été optimisés tout en conservant un temps de gravure raisonnable. Dans notre cas, la taille du faisceau a notamment été réglée autour de 20 nm pour un temps d'exposition de 1.5 ms et un pas de 3.2 nm. Le nombre de boucles de passage du faisceau d'ions est alors ajusté selon la finesse du trait désirée ou de l'épaisseur du film métallique à graver. Par exemple, le nombre de boucles  $N$  nécessaire pour graver un film épais de 200 nm est deux fois plus élevé que pour un film de 50 nm. Pour donner un ordre de grandeur, nous avons utilisé un nombre de boucles de  $N = 4$  pour graver des sillons d'environ 50-100 nm de largeur, sur un film épais de 200 nm. Ce sera notamment le cas pour les cavités spirales et circulaires. Pour les sillons à mi-hauteur, nous avons utilisé  $N = 2$  et les nanostructures isolées, en  $T$  ou  $\Lambda$ , ont été gravées avec un nombre de boucle  $N = 4$ . Du fait de sa grande flexibilité et précision de gravure, cette méthode de fabrication par FIB s'est révélée particulièrement adaptée pour notre projet. Toutefois, la reproductibilité fluctue de manière importante selon les paramètres de réglage. Comme nous le verrons par la suite, les effets chiraux optiques sont très sensibles aux défauts de fabrication, ce qui nécessite une grande maîtrise de ces facteurs.

---

2. Modèle FIB Orsay Physics

3. Modèle Leo 1530



### 3.3 Montage 1 : Excitation plasmonique en champ lointain

Comme discuté précédemment, une onde plane peut se coupler en plasmons de surface par le biais d'éléments diffractifs locaux. Nous présentons ici un premier montage optique qui sera utilisé pour exciter et caractériser les échantillons en champ lointain. L'avantage de cette approche en espace libre, est qu'elle est modulaire et rapide à implémenter. Elle est particulièrement adaptée à l'étude de la chiralité des systèmes plasmoniques car on peut insérer, à l'entrée et en sortie de l'échantillon, des filtres polarisant pour pouvoir réaliser une tomographie complète en polarisation.

#### 3.3.1 Description du dispositif

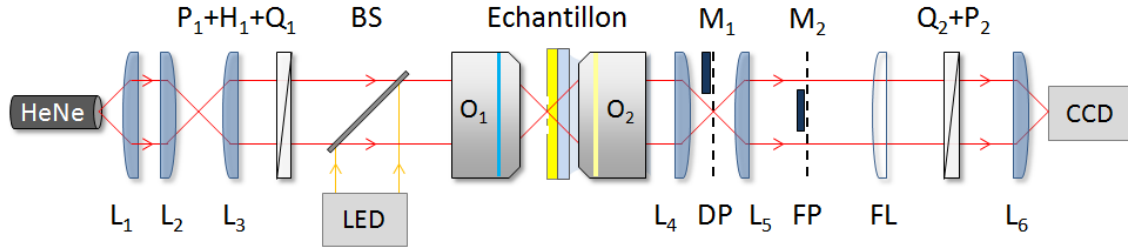


FIGURE 3.1 – Illustration du montage optique 1 :  $L_i$  ( $i=1$  à 6) et FL (*Fourier Lens*) représentent des lentilles convergentes,  $P_i$  des polariseurs linéaires,  $H_i$  des lames demi-onde,  $Q_i$  des lames quart-d'onde ( $i=1$  à 2), BS (*Beam Splitter*) une lame séparatrice,  $M_i$  des filtres spatiaux ( $i=1$  à 2), DP le plan direct, FP le plan de Fourier.

Un schéma simplifié du montage optique est représenté sur la Fig. 3.1. Le repérage préalable des nanostructures est effectué à l'aide d'une lampe blanche LED (*Light Emitting Diode*) qui permet d'éclairer l'ensemble de l'échantillon. Les structures sont ensuite excitées par un faisceau laser HeNe à une longueur d'onde de  $\lambda = 633 \text{ nm}$ . A incidence normale, le faisceau est collimaté par une première lentille convergente  $L_1$ , puis focalisé dans le plan de l'échantillon via un objectif de microscope  $O_1$  ( $NA = 0.75$ ,  $\times 40$ ). La taille du faisceau du laser peut être adaptée à l'ouverture numérique de  $O_1$  au moyen de deux lentilles  $L_2$  et  $L_3$ . Dans cette configuration, les plasmons sont générés par diffraction sur des éléments diffractifs gravés sur l'échantillon, auxquels la largeur à mi-hauteur du faisceau laser est ajustée ( $FWHM=2 \mu\text{m}$ , *Full Width Half Maximum*). La réponse optique est ensuite collectée par un objectif de microscope à immersion  $O_2$  ( $NA = 1.45$ ,  $\times 100$ ). L'utilisation d'un objectif à immersion d'ouverture numérique  $NA > 1$  permet notamment de capturer des rayons se propageant en dehors du cône de lumière, tels que des ordres de diffraction élevés et les plasmons de surface par LRM dans la limite de  $|\mathbf{k}| < NA \times k_0$ .

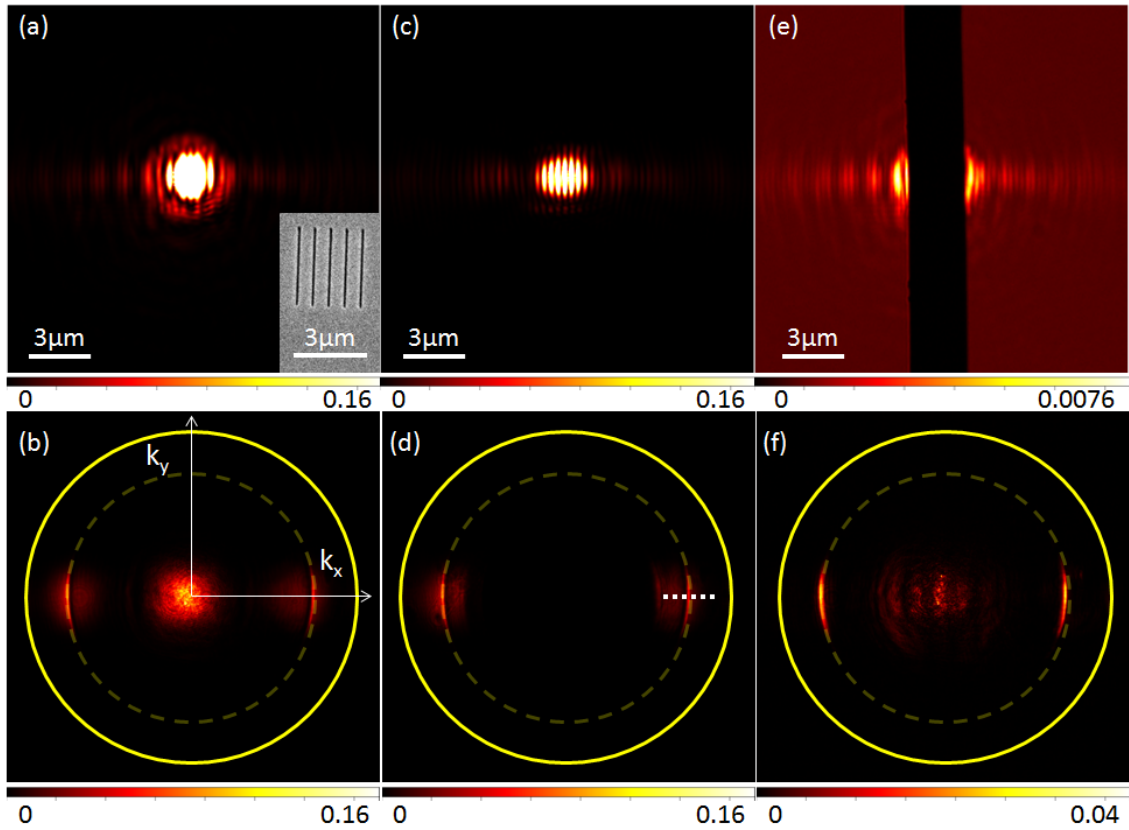


FIGURE 3.2 – Images obtenues en LRM du plan direct (DP, première ligne) et du plan de Fourier (FP, deuxième ligne). L’image SEM de l’échantillon est présentée dans l’encart inférieur droite de (a). (a-b) Aucun filtre spatial n’est utilisé. (c-d) Le filtre  $M_2$  est placé dans le FP. Une coupe d’intensité a été réalisée suivant le trait blanc pointillé. (e-f) Le filtre  $M_1$  est placé dans le DP. Le cercle jaune en pointillé indique la position du cercle plasmonique de rayon  $|\mathbf{k}| = k_{SP}$ . Le cercle jaune continu de rayon  $k_0 NA$  indique l’ouverture maximale de l’objectif  $O_2$ . Echelle de couleur : Intensité (u.a.).

### 3.3.2 Système d’imagerie

Pour faciliter la compréhension des images typiques obtenues par diffraction et LRM, considérons le cas simple d’une onde plasmonique produite par un réseau de fentes. Ce dernier est constitué de 5 sillons de longueur  $3 \mu\text{m}$ , de largeur  $50 \text{ nm}$  et séparés d’une période  $a_x = \lambda_{SP}$ , comme montré dans l’encart de la Fig. 3.2(a). L’épaisseur du film étant de  $50 \text{ nm}$ , les plasmons peuvent donc fuir dans le substrat et être collectés en champ lointain par LRM. A incidence normale, le faisceau d’excitation est polarisé linéairement, perpendiculairement aux fentes afin de maximiser la génération des plasmons. En effet, le couplage entre l’onde incidente et le réseau induit un dipôle  $\boldsymbol{\mu}(\mathbf{r}) = (\mathbf{E}(\mathbf{r}) \cdot \hat{n}) \hat{n}$ , où  $\mathbf{r}$  est le vecteur position d’un point situé sur le sillon,  $\hat{n}$  la normale au sillon et  $\mathbf{E}(\mathbf{r})$  le champ incident. La génération des plasmons de surface est donc maximale lorsque la polarisation incidente est parallèle à  $\hat{n} = \hat{x}$ .

La Fig. 3.2(a) présente une image du plan direct (DP) de l'échantillon. Le réseau est situé au centre de l'image au niveau du spot intense, correspondant à la transmission directe du faisceau incident. De part et d'autre de ce spot, on observe un faible signal se propageant selon la direction  $\hat{x}$  qui est associé à l'onde plasmonique. On remarque que l'observation des plasmons dans le plan direct est fortement entravée par le faisceau incident qu'il est possible bloquer à l'aide d'un filtre spatial  $M_2$ .

## Plan de Fourier

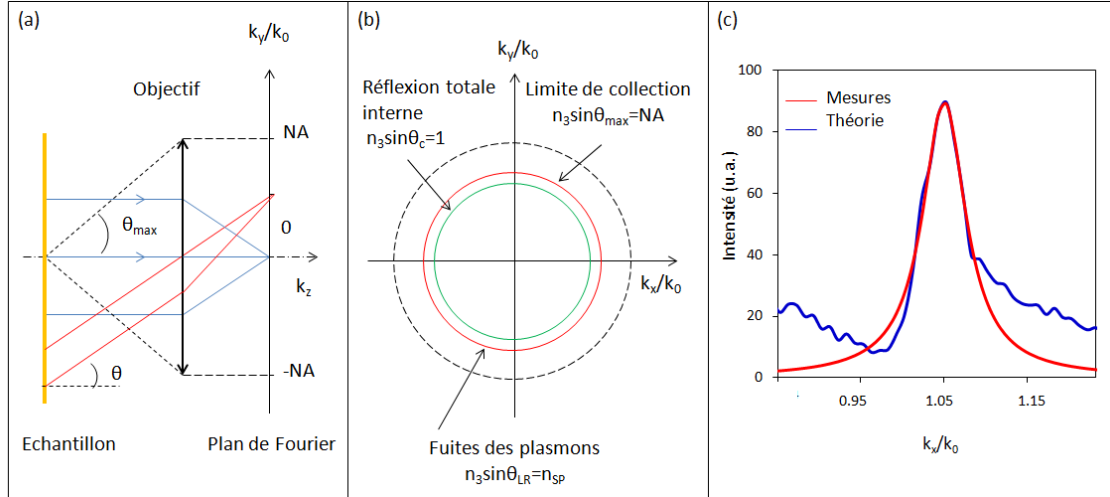


FIGURE 3.3 – (a) Illustration de l'espace de Fourier dans le plan  $(O, k_y, k_z)$  et (b) dans le plan  $(O, k_x, k_y)$ . (c) Profil d'intensité correspondant à la coupe sur la Fig. 3.2(d). La courbe rouge théorique a été ajustée avec une fonction Lorentzienne.

Pour ce faire, nous imageons tout d'abord le plan de Fourier, c'est à dire la distribution angulaire obtenue par transformée de Fourier de l'image de l'échantillon. Dans cet espace, tout rayons faisant un même angle  $\theta$  par rapport à l'axe optique, convergent en un même point, comme illustré sur la Fig. 3.3(a). Par exemple, les faisceaux incidents parallèles à  $O_z$  sont focalisés en  $\mathbf{k} = 0$ . Le plan de Fourier est accessible via le plan focal arrière de l'objectif de microscope (*Back Focal Plane*, BFP), situé à l'intérieur de l'objectif  $O_2$ . Par l'intermédiaire d'une lentille ( $L_5$ ), le BFP est translaté, hors de l'objectif, dans le plan-image de  $L_5$ , puis capturé au moyen d'une lentille de Fourier escamotable (FL). Sur la Fig. 3.3(b), le spectre angulaire  $(O, k_x, k_y)$  est délimité par les trois angles caractéristiques  $\theta_c < \theta_{LR} < \theta_{max}$ , où est  $\theta_c$  l'angle critique de réflexion totale,  $\theta_{LR} = \theta_{SP}$  l'angle de fuite des plasmons et  $\theta_{max}$  l'angle maximum de collection de  $O_2$ . La signature LRM des plasmons de surface situé à  $|\mathbf{k}|/k_0 = n_{sp}$  est souvent appelé le "cercle plasmonique".

Expérimentalement, nous observons effectivement le plan de Fourier un signal piqué au niveau du cercle plasmonique, représenté en pointillé (Fig. 3.2(b)). L'angle maximum de collection  $\theta_{max}$ , est symbolisé par le cercle continu jaune. Notons que la distribution angulaire de ce signal n'est pas uniforme sur le cercle mais qu'elle est

concentrée selon l'axe privilégié  $\hat{k}_x = \hat{x}$  en raison de l'orientation des sillons ( $\hat{n} = \hat{x}$ ). La divergence angulaire autour de cet axe résulte de la diffraction des plasmons sur les sillons. Par ailleurs, ce signal possède une largeur finie dont la valeur permet d'estimer l'amortissement des plasmons durant leur propagation. En effet, comme démontré dans [40, 42], la distribution en intensité du signal LRM des plasmons dans le plan de Fourier peut être décrite par une Lorentzienne telle que :

$$I(k_x) \propto \frac{1}{(k_x - \Re(k_{sp}))^2 + \Im(k_{sp})^2}. \quad (3.1)$$

Celle-ci est centrée sur  $\Re(k_{sp})$  et caractérisée par une largeur à mi-hauteur  $\Im(k_{sp})$ . Pour estimer cette distance de propagation expérimentale, nous réalisons une coupe d'intensité comme indiquée en pointillé blanc sur la Fig. 3.2(d). L'ajustement avec un profil Lorentzien nous donne une longueur de propagation  $L_{SP} = 1/(2\Im(k_{SP})) \simeq 8 \mu m$  (Fig. 3.3(c)). Cette valeur est inférieure à la distance théorique  $L_{SP} = 20 \mu m$ , cela en raison des fuites radiatives et de la rugosité du film métallique. Notons que les données expérimentales présentent un profil asymétrique, appelé résonance Fano [37]. Ce phénomène est causé par l'interférence entre le bruit de fond lumineux et le signal LRM.

### Ordres de diffraction

Sur la Fig. 3.2(b), nous observons également trois ordres de diffraction situés autour de  $k_x \approx 0$ ,  $-k_{SP}$  et  $+k_{SP}$ . Ils résultent de la diffraction du laser par le réseau et dont les ordres  $p$  sont donnés par la formule des réseaux suivante :

$$n_3 \sin(\theta_p) = n_1 \sin(\theta_i) + p \frac{\lambda}{a_x}, \quad (3.2)$$

où  $n_3 = 1.45$  et  $n_1 = 1$  sont respectivement l'indice de réfraction du verre et de l'air. A incidence normale  $\theta_i = 0$  et lorsque  $a_x = \lambda_{SP}$ , ce dispositif expérimental permet de collecter les trois premiers ordres de diffraction tels que :

$$p = 0 \rightarrow k_x = 0, \quad (3.3)$$

$$p = \pm 1 \rightarrow k_x = \pm k_{SP}. \quad (3.4)$$

Cette configuration sera notamment employée pour analyser le découplage des plasmons par diffraction, c'est à dire la conversion des plasmons en ondes propagatives par le biais de réseaux plasmoniques.

### Filtrage spatial

Comme montré sur la Fig. 3.2(b), le faisceau incident est majoritairement transmis à l'ordre 0, au voisinage de  $\mathbf{k} = 0$ . En y plaçant un filtre spatial  $M_2$ , nous pouvons en bloquer une grande partie et isoler le signal plasmonique comme montré sur la Fig. 3.2(d). Ce filtre est constitué d'un disque de chrome opaque évaporé sur un substrat de verre. Cela permet d'imager une fois dans le plan direct (Fig. 3.2(c)), un signal plasmonique avec un meilleur contraste. On distingue alors nettement des

franges interférences plasmoniques, signature de la cohérence du signal LRM.

Lorsque le signal plasmonique nécessite d'être analysé dans le plan de Fourier, la lumière incidente parasite peut également être filtrée directement dans le plan direct à l'aide d'un filtre spatial  $M_1$ , comme montré dans la Fig. 3.2(e) (un fond lumineux a été ajouté pour mettre en évidence la position du filtre). Les ordres de diffraction sont atténués et le signal plasmonique apparaît plus net, comme on peut le constater sur la Fig. 3.2(f). Ainsi, comme on peut le voir, la modularité de ce montage permet de filtrer les bruits parasites et ainsi d'augmenter la sensibilité de nos mesures.

### 3.4 Tomographie en polarisation : formalismes de Jones et Mueller

L'autre avantage majeur de ce montage optique est de pouvoir contrôler la polarisation à l'entrée et en sortie de l'échantillon. Il est donc possible de réaliser une tomographie complète en polarisation du système. Pour cela, l'état de polarisation du faisceau incident est contrôlé par le biais d'un polariseur  $P_1$ , d'une lame demi-onde  $H_1$  et d'une lame quart-d'onde  $Q_1$ , placés à l'entrée de l'objectif de microscope  $O_1$ . A la sortie, nous insérons de manière symétrique une lame-quart d'onde ( $Q_2$ ) suivie d'un polariseur ( $P_2$ ) entre l'échantillon et la caméra CCD. Ces filtres polarisant sont montés sur des moteurs en rotation<sup>4</sup>.

Nous abordons ci-dessous les éléments clés relatifs aux formalismes de Jones et de Mueller que nous avons utilisés pour caractériser l'état de polarisation en sortie de nos échantillons.

#### 3.4.1 Vecteurs et matrices de Jones

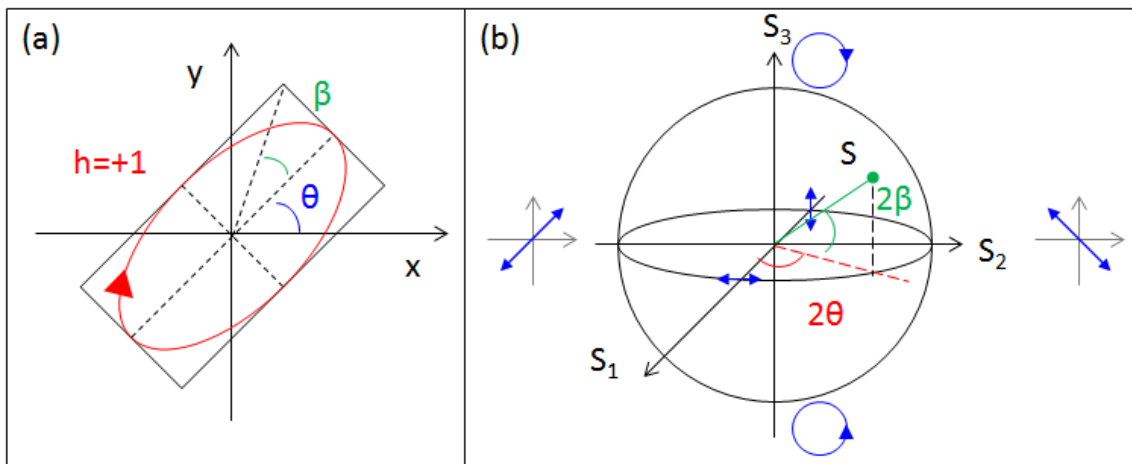


FIGURE 3.4 – (a) Illustration d'une ellipse de polarisation. (b) Sphère de Poincaré.

4. Thorlabs PRM1/MZ8

Considérons une onde plane monochromatique se propageant selon l'axe optique ( $Oz$ ). Le champ électrique est donné par :

$$\mathcal{E}(z, t) = \begin{pmatrix} \mathcal{E}_x = \mathcal{E}_{0x} \cos(\omega t - kz + \delta_x) \\ \mathcal{E}_y = \mathcal{E}_{0y} \cos(\omega t - kz + \delta_y) \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (3.5)$$

avec  $\mathcal{E}_{0x}$ ,  $\mathcal{E}_{0y}$  les amplitudes réelles et  $\delta_x$ ,  $\delta_y$  les phases associées aux composantes réelles du champ  $\mathcal{E}_x$  et  $\mathcal{E}_y$ . On peut montrer que le champ électrique, à une position  $z$  donnée, décrit une ellipse d'équation :

$$\left(\frac{\mathcal{E}_x}{\mathcal{E}_{0x}}\right)^2 - 2\frac{\mathcal{E}_x\mathcal{E}_y}{\mathcal{E}_{0x}\mathcal{E}_{0y}} \cos(\delta_y - \delta_x) + \left(\frac{\mathcal{E}_y}{\mathcal{E}_{0y}}\right)^2 = \sin^2(\delta_y - \delta_x). \quad (3.6)$$

Comme représentée sur la Fig. 3.4, une ellipse est décrite par son ellipticité  $\beta$  ( $-\pi/4 \leq \beta \leq \pi/4$ ) et par la direction de ses axes  $\theta$  ( $-\pi/2 \leq \theta \leq \pi/2$ ). Par exemple, une onde polarisée linéairement possède une ellipticité  $\beta = 0$  tandis que pour une polarisation circulaire  $\beta = \pm 45^\circ$ . Le sens de rotation d'une polarisation elliptique est déterminée par le signe de  $h = \text{sign}(\theta)$  : le champ tourne dans le sens horaire si  $h = +1$ , et de sens opposé si  $h = -1$ . Les caractéristiques de l'ellipse sont reliées aux paramètres du champ par les relations suivantes :

$$\sin(2\beta) = \sin(2\alpha) \sin(\delta), \quad (3.7)$$

$$\tan(2\theta) = \tan(2\alpha) \cos(\delta), \quad (3.8)$$

$$\tan(2\beta) = \sin(2\theta) \sin(\delta), \quad (3.9)$$

avec  $\tan(\alpha) = \mathcal{E}_{0y}/\mathcal{E}_{0x}$  et  $\delta = \delta_y - \delta_x$ . Afin de décrire complètement une onde électromagnétique polarisée, monochromatique et uniforme, nous pouvons exprimer le champ sous forme de vecteur de Jones soit :

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} \mathbf{E}_x = \mathcal{E}_{0x} \\ \mathbf{E}_y = \mathcal{E}_{0y} e^{i\delta} \end{pmatrix}, \quad (3.10)$$

où les valeurs complexes  $\mathbf{E}_x$ ,  $\mathbf{E}_y$  décrivent l'amplitude du champ et  $\delta$  la phase. Le facteur  $e^{i(kz - \omega t)}$  a été omis par souci de clarté. La transformation de ce vecteur de Jones après interaction avec un milieu optique est modélisée par la matrice de Jones  $J$ . Dans le système cartésien  $(O, x, y)$ , elle est définie comme suit :

$$\begin{pmatrix} \mathbf{E}_x \\ \mathbf{E}_y \end{pmatrix}_{\text{OUT}} = J \begin{pmatrix} \mathbf{E}_x \\ \mathbf{E}_y \end{pmatrix}_{\text{IN}} \quad \text{avec} \quad J = \begin{bmatrix} j_{00} & j_{01} \\ j_{10} & j_{11} \end{bmatrix}. \quad (3.11)$$

où  $j_{ij}$  ( $i = 1, 2$ ) sont des coefficients complexes.

**Polarisations propres** Les valeurs propres et les états propres de cette matrice de Jones décrivent les états de polarisation qui ne sont pas modifiés après propagation dans le milieu optique. La résolution de l'équation aux valeurs propres  $J\mathbf{E} = \lambda\mathbf{E}$  nous donne :

$$\lambda_{\pm} = \frac{1}{2} \left[ (j_{00} + j_{11}) \pm \sqrt{(j_{00} - j_{11})^2 + 4j_{01}j_{10}} \right], \quad (3.12)$$

ainsi que les vecteurs propres associés :

$$\mathbf{E}_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{|j_{10}|^2 + |\lambda_{\pm} - j_{00}|^2}} \begin{pmatrix} j_{10} \\ \lambda_{\pm} - j_{00} \end{pmatrix}. \quad (3.13)$$

### 3.4.2 Vecteur de Stokes et matrice de Mueller

En pratique, nous mesurons l'intensité et non pas le champ électrique lui-même. Le vecteur de Stokes  $\mathbf{S}$  permet de déterminer l'état de polarisation d'une onde à partir d'une mesure d'intensité. Ce dernier est directement connecté à l'expérience puisqu'il s'applique à des quantités réelles et mesurables :

$$\mathbf{S} = \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_X + I_Y \\ I_X - I_Y \\ I_P - I_M \\ I_L - I_R \end{pmatrix}, \quad (3.14)$$

avec  $I_i$  les intensités mesurées sur les bases de polarisations  $i$  : les états linéaires  $\mathbf{X}$ ,  $\mathbf{Y}$ ,  $\mathbf{P}$  ( $+45^\circ$ ),  $\mathbf{M}$  ( $-45^\circ$ ) et les états circulaires  $\mathbf{L}$  (gauche),  $\mathbf{R}$  (droite). Le vecteur de Stokes s'exprime en fonction du champ tel que :

$$\mathbf{S} = \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \langle E_x^* E_x + E_y^* E_y \rangle \\ \langle E_x^* E_x - E_y^* E_y \rangle \\ \langle E_y^* E_x + E_x^* E_y \rangle \\ \langle i(E_x^* E_y - E_x E_y^*) \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \langle \mathcal{E}_{0x}^2 \rangle + \langle \mathcal{E}_{0y}^2 \rangle \\ \langle \mathcal{E}_{0x}^2 \rangle - \langle \mathcal{E}_{0y}^2 \rangle \\ \langle 2\mathcal{E}_{0x}\mathcal{E}_{0y} \cos(\delta) \rangle \\ \langle 2\mathcal{E}_{0x}\mathcal{E}_{0y} \sin(\delta) \rangle \end{pmatrix}, \quad (3.15)$$

avec  $\langle \dots \rangle$  la moyenne temporelle. L'ellipticité  $\beta$ , l'orientation des axes  $\theta$  et le sens de rotation  $h$  de l'ellipse se déduisent du vecteur de Stokes normalisé selon :

$$\mathbf{S} = \begin{pmatrix} 1 \\ S_1/S_0 \\ S_2/S_0 \\ S_3/S_0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ \cos(2\beta) \cos(2\theta) \\ \cos(2\beta) \sin(2\theta) \\ \sin(2\beta) \end{pmatrix}. \quad (3.16)$$

Expérimentalement, nous mesurerons les intensités  $I_i$  puis à l'aide des paramètres de Stokes, nous pourrions reconstruire l'ellipse de polarisation, pixel par pixel, à partir des relations suivantes :

$$\sin(2\beta) = \frac{S_3}{S_0}, \quad (3.17)$$

$$\tan(2\theta) = \frac{S_2}{S_1}. \quad (3.18)$$

Par ailleurs, afin de caractériser les effets d'un milieu optique sur une onde électromagnétique, nous pouvons calculer les éléments  $m_{ij}$  ( $i, j = 0, 1, 2, 3$ ) de la matrice de Mueller  $M$  qui décrit la transformation d'un vecteur de Stokes après interaction avec ce milieu :

$$\begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix}_{\text{OUT}} = M \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix}_{\text{IN}} \quad \text{avec} \quad M = \begin{bmatrix} m_{00} & m_{01} & m_{02} & m_{03} \\ m_{10} & m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{20} & m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{30} & m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{bmatrix}. \quad (3.19)$$

**Sphère de Poincaré** Une autre manière de représenter l'évolution de la polarisation est d'utiliser la sphère de Poincaré. L'état de polarisation  $\mathbf{S}$  peut être représenté par un point sur la sphère de Poincaré (Fig. 3.4(b)). Dans cette représentation, les axes de coordonnées sont définis par les paramètres de Stokes  $S_1$ ,  $S_2$  et  $S_3$  et le rayon de la sphère est donné par  $S_0$ . Les polarisations linéaires se situent à l'équateur ( $S_3 = 0$ ) et les états circulaires aux pôles ( $S_1 = S_2 = 0$ ) : Nord pour  $\mathbf{L}$  et Sud pour  $\mathbf{R}$ .

Pour compléter la description polarimétrique du milieu et de la lumière, nous introduisons ci-dessous trois paramètres supplémentaires basés sur ce formalisme :

**Degré de polarisation** Tandis que le formalisme de Jones se restreint à des ondes totalement polarisées, les vecteurs de Stokes s'appliquent également aux ondes partiellement polarisées. Le degré de polarisation ( $D_P$ ) mesure la pureté de la polarisation d'une onde :

$$D_P = \frac{\sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}}{S_0} \quad \text{avec} \quad 0 \leq D_P \leq 1. \quad (3.20)$$

Une onde partiellement polarisée ( $D_P < 1$ ) sera localisée à l'intérieur de la sphère de Poincaré. Des états totalement polarisés ( $D_P = 1$ ) seront représentés sur la surface de la sphère à  $S_0$  alors que les états non polarisés ( $D_P = 0$ ) correspondent au centre de celle-ci.

**Pouvoir polarisant** A partir de la matrice de Mueller, on peut évaluer la faculté du milieu à polariser une onde incidente non-polarisée. On quantifie ce pouvoir polarisant par l'indice de polarisation  $I_P$  définie comme suit :

$$I_P = \frac{1}{m_{00}} \sqrt{m_{10}^2 + m_{20}^2 + m_{30}^2}. \quad (3.21)$$

**Indice de dépolarisation** A l'inverse, l'indice de dépolarisation  $I_D$  caractérise le pouvoir de dépolarisation d'un système optique sur un état de polarisation donné. Il est à différencier du degré de polarisation  $D_P$  qui caractérise un état de polarisation d'une onde tandis que  $I_D$  quantifie le système optique. Il est défini comme la moyenne sur les états purs de polarisation tels que :

$$\rho_D = \sqrt{\frac{\text{Tr}(M^T M) - m_{00}^2}{3m_{00}^2}} \leq 1, \quad (3.22)$$

avec  $\text{Tr}$  l'opérateur trace et  $T$  la transposée.

### 3.4.3 Matrice de Mueller-Jones

Toute matrice de Jones peut s'exprimer sous forme de matrice de Mueller. L'inverse n'est vrai que pour des systèmes non dépolarisant soit  $I_P = 1$  [43]. Lorsque cette



condition est vérifiée, la matrice Mueller-Jones désigne la matrice de Jones calculée à partir des coefficients de la matrice de Mueller. En adoptant une expression complexe, la matrice de Jones peut se réécrire de la manière suivante :

$$J = e^{i\theta_{00}} \begin{pmatrix} r_{00} & r_{01}e^{i(\theta_{01}-\theta_{00})} \\ r_{10}e^{i(\theta_{10}-\theta_{00})} & r_{11}e^{i(\theta_{11}-\theta_{00})} \end{pmatrix}. \quad (3.23)$$

Chaque élément de  $J$  peut alors être calculé à partir de  $M$  en utilisant les relations suivantes :

$$\begin{aligned} r_{00} &= \sqrt{\frac{m_{00} + m_{01} + m_{10} + m_{11}}{2}}, \\ r_{01} &= \sqrt{\frac{m_{00} - m_{01} + m_{10} - m_{11}}{2}}, \\ r_{10} &= \sqrt{\frac{m_{00} + m_{01} - m_{10} - m_{11}}{2}}, \\ r_{11} &= \sqrt{\frac{m_{00} - m_{01} - m_{10} + m_{11}}{2}}, \\ e^{i(\theta_{01}-\theta_{00})} &= \frac{m_{02} + m_{12} - i(m_{03} + m_{13})}{\sqrt{(m_{00} + m_{10})^2 - (m_{01} + m_{11})^2}}, \\ e^{i(\theta_{10}-\theta_{00})} &= \frac{m_{20} + m_{21} + i(m_{30} + m_{31})}{\sqrt{(m_{00} + m_{01})^2 - (m_{10} + m_{11})^2}}, \\ e^{i(\theta_{11}-\theta_{00})} &= \frac{m_{22} + m_{33} + i(m_{32} - m_{23})}{\sqrt{(m_{00} + m_{11})^2 - (m_{10} + m_{01})^2}}. \end{aligned}$$

## 3.5 Montage 2 : Le champ proche optique pour l'excitation des plasmons de surface

Le principe général du SNOM repose sur deux éléments critiques : la sonde locale et un système de régulation qui contrôle la distance entre la sonde et l'échantillon. La détection d'une grandeur d'interaction entre la sonde et le voisinage immédiat de l'échantillon permet d'ajuster la position de la pointe optique. Le SNOM utilisé au cours de cette thèse est un dispositif expérimental spécifiquement conçu, au laboratoire, pour répondre aux besoins de notre équipe. Il a été initialement développé au cours de la thèse de N. Chevalier [44] puis optimisé par O. Mollet [45].

### 3.5.1 Régulation de la distance sonde-échantillon

Le montage optique (Fig. 3.5(a)) est basé sur un microscope inversé Nikon<sup>5</sup> où l'échantillon est excité par le dessus par une sonde locale et l'objectif de microscope est placé sous l'échantillon. Ce dernier est monté sur une platine piézoélectrique<sup>6</sup>,

5. Eclipse TE 2000 U

6. Princeton Instrument, P-733.3DD

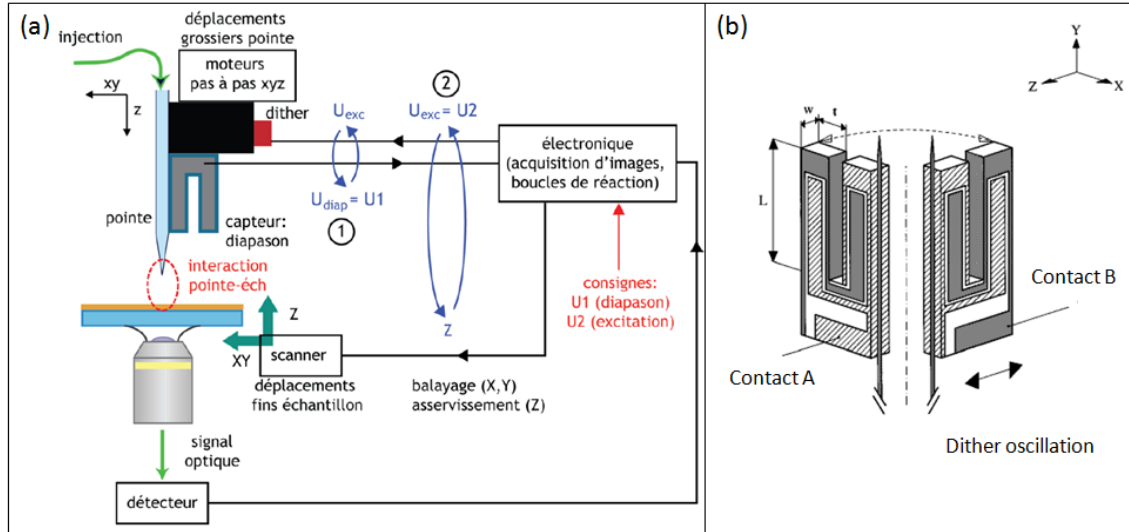


FIGURE 3.5 – (a) Principe de fonctionnement du SNOM. Figure tirée de [45]. (b) Schéma du diapason sur lequel est collée la pointe SNOM. Les contacts A et B délivrent la différence de potentiel générée par le mouvement des branches. Figure tirée de [46].

qui permet de contrôler avec précision la distance pointe-échantillon selon  $z$  et de scanner latéralement l'échantillon selon  $x$  et  $y$ . L'acquisition des signaux de rétroaction, le balayage et l'asservissement de la platine de translation sont gérés au moyen d'un contrôleur Nanonis<sup>7</sup>.

La régulation de la distance sonde-échantillon est basée sur la détection des forces qui s'exercent entre la sonde SNOM et la surface de l'échantillon. La sonde est intégrée à un diapason dont l'amplitude d'oscillation est modifiée lorsque celle-ci se trouve à une dizaine de nanomètres au dessus de l'échantillon (Fig. 3.5(b)). Le diapason est fabriqué en quartz, un matériau piézoélectrique qui a la faculté de générer une tension électrique sous l'action d'une contrainte mécanique. Par effet piezo-électrique, le mouvement mécanique de la sonde SNOM est alors convertie en signal électrique. La détection des fluctuations de tension, délivrée par le diapason, alimente une boucle d'asservissement afin de maintenir, en régime champ proche, une distance sonde-échantillon constante durant le scan.

Le diapason est un oscillateur mécanique en forme de U. Il est caractérisé par une constante de raideur et une masse qui vont déterminer sa fréquence de résonance  $f_0$  et son facteur de qualité  $Q$ . Celui-ci est excité mécaniquement par un dither, une céramique piézoélectrique, alimenté par une tension  $V_{exc}$  de fréquence d'oscillation variable  $f_{exc}$ . Chaque branche du diapason est munie d'électrodes qui délivrent une tension  $V_{diap}$ , proportionnelle à l'amplitude d'oscillation des branches. L'amplitude optimale, qui assure une bonne qualité d'image et un asservissement robuste, a été préalablement déterminée à 0.26 nm (soit  $U_1 = V_{diap} = 0.9 \mu V$ ). Cette calibration

7. Realtime Controller RC4, Signal Conditioning SC4, Oscillation Controller OC4

a été réalisée par O. Mollet [45], dont les détails techniques sont disponibles dans sa thèse. Lorsque  $f_{exc} = f_0$ , l'oscillation est maximale et  $V_{exc}$  est ajustée en continue de manière à ce que le diapason vibre à cette amplitude nominale. La distance sonde-échantillon est finalement réglée à l'aide d'une tension de consigne, fixée à  $U_2 = V_{exc} + 10\%$ .

A vide, la résonance du diapason est typiquement caractérisée par une fréquence  $f_0 = 33 \text{ kHz}$  et un facteur de qualité  $Q=6000$ . Le collage de la sonde sur le diapason est une étape critique car la masse de la pointe, la quantité de colle à travers laquelle les vibrations se dissipent, modifient fortement les propriétés de résonance du diapason. Le facteur de qualité chute en moyenne autour de  $Q=300$ . Avant toute descente de la sonde en champ proche, une mesure préalable de la résonance est effectuée et enregistrée comme référence dans la boucle de rétroaction.

Précisons que l'approche de la pointe à la surface de l'échantillon est réalisée en deux temps :

1. Un contrôle visuel permet d'aligner la sonde avec l'axe optique du montage selon  $x, y$  puis de l'approcher manuellement jusqu'à environ 1 mm de la surface de l'échantillon. Ensuite, la pointe est descendue grossièrement au moyen d'un moteur pas à pas.
2. Cette étape est suivie d'une approche fine assistée par ordinateur. Elle est réalisée via la boucle d'asservissement : la position de la pointe est maintenue fixe pendant que la platine piézoélectrique est élevée jusqu'à ce que la tension de consigne est atteinte.

Cette régulation dynamique de la distance sonde échantillon permet de scanner latéralement l'échantillon en  $xy$  tout en maintenant la sonde SNOM en champ proche. Cela permet de reconstruire des images l'échantillon avec une grande résolution. Cette technique sera employée pour exciter localement les plasmons et cartographier la LDOS optique de structures plasmoniques chirales.

## 3.5.2 Système d'imagerie

### Imagerie grand-champ et microscopie à fuites radiatives

Les éléments essentiels qui constituent le montage optique de collection du SNOM sont présentés sur la Fig. 3.6. Les signaux en sortie de l'échantillon sont collectés en champ lointain à l'aide d'un objectif de microscope à immersion  $O_2$  ( $NA=1.4, \times 100$ )<sup>8</sup>. Comme précédemment, une lentille de Fourier amovible est utilisée pour imager le plan de Fourier et l'analyse en polarisation est réalisée par le biais de filtres polarisant placés en sortie de l'objectif. Le montage comprend deux modes d'observation. Premièrement, une caméra CCD<sup>9</sup> permet de capturer une image instantanée et grand-champ de la distribution d'intensité issue de l'échantillon. De plus, comme l'angle de collection maximale du microscope ( $\theta_{max} = 60^\circ$ ) est supérieur à l'angle de

8. Objectif de microscope : CFI Plan Apo. Huile à immersion : Cargille 50350,  $n=1.46$  ( $25^\circ C$ ,  $\lambda = 589.3 \text{ nm}$ )

9. WATEC WAT-120 N+

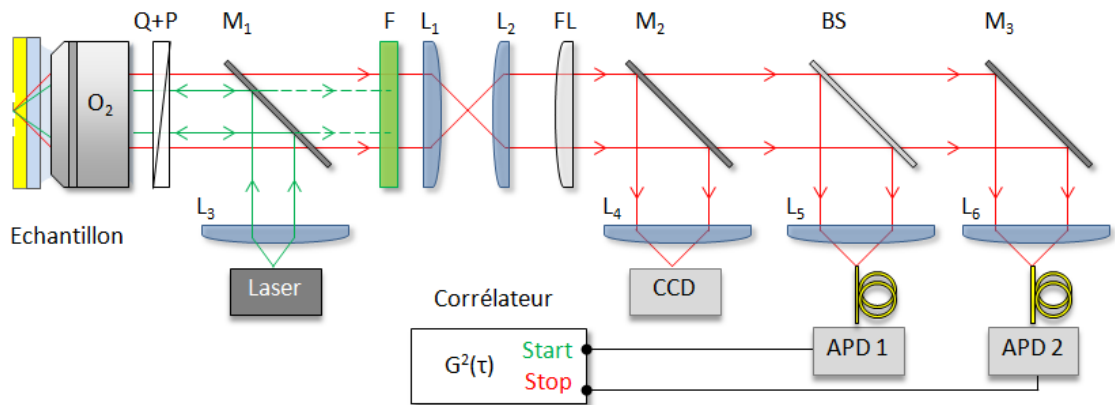


FIGURE 3.6 – Montage optique en sortie du SNOM : Q lame quart-d’onde, P polariseur,  $M_i$  miroir ( $M_1$  et  $M_2$  sont amovibles),  $L_i$  lentilles convergentes, FL lentille de Fourier amovible, BS lame séparatrice, F filtre passe-haut.

fuite des plasmons  $\theta_{SP} = 46^\circ$ , cette méthode de détection est adaptée pour étudier la propagation des plasmons de surface par imagerie LRM.

### Microscopie confocale

Deuxièmement, le repérage d’objet de taille nanométrique, tels que les nanocristaux de diamant, nécessite une résolution optique en mesure de surpasser la limite de diffraction. Afin d’améliorer la résolution des microscopes optiques, M. Minsky [47] a inventé le microscope confocale. Le principe repose sur deux critères : une excitation quasi-ponctuelle de l’échantillon et un filtrage spatial de la lumière émise par un sténopé (*pinhole*). L’objectif est d’une part de réduire la lumière parasite en illuminant uniquement une zone restreinte de l’échantillon. D’autre part, le pinhole est placé devant le détecteur de manière à ce que le bruit optique situé hors du plan de l’échantillon soit bloqué et n’arrive pas jusqu’au détecteur.

Dans notre montage, l’excitation locale sera réalisée soit au moyen d’un laser fortement focalisé, soit par la pointe optique SNOM. Le signal pourra être collecté à l’aide d’une fibre optique, utilisée comme pinhole, dont la zone de collection est délimitée par la taille du cœur, soit 500 nm au niveau de l’échantillon. Pour reconstruire l’image de l’échantillon, la platine piézoélectrique est scannée latéralement et le signal est enregistré, point par point, par une APD (*Avalanche Photodiode*)<sup>10</sup>. Comme nous le verrons par la suite, en isolant la lumière provenant d’un faible volume d’excitation, le rapport signal à bruit atteint par la microscopie confocale est particulièrement adapté au repérage des nano-diamants isolés, contenant un faible nombre de centres NV.

10. Perkin Elmer, Single Photon Counting Module AQR-16-FC

## Interféromètre de Hanbury-Brown et Twiss HBT

Pour former un interféromètre de Hanbury-Brown et Twiss (HBT), cette APD est utilisée conjointement avec une deuxième APD. La fonction de ce dispositif est de caractériser le degré de cohérence du second ordre pour identifier la nature quantique d'une source lumineuse. En particulier, l'autocorrélation en intensité  $g^2(\tau)$  caractérise la probabilité de détecter un photon au temps  $t + \tau$ , sachant qu'un photon a été détecté au temps  $t$ . L'analyse statistique des photons permet de mettre en évidence le caractère quantique d'un émetteur : une source de photon unique est caractérisée par un dégroupement de photons ou *antibunching*, c'est à dire une fonction d'autocorrélation nulle à  $\tau = 0$ .

A l'origine, R.H. Hanbury Brown et R.Q. Twiss ont mis au point cet interféromètre d'intensité pour effectuer une corrélation de l'intensité lumineuse émise par l'étoile Sirius A [48]. Ils ont ainsi pu déterminer son diamètre apparent. Depuis ces travaux, le corrélateur HBT a été adapté et aujourd'hui il est couramment utilisé pour étudier la statistique des photons. En 1977, H.J. Kimble, M. Dagenais et L. Mandel démontrent le dégroupement de photon d'une source à photon unique [49, 50].

Le principe consiste à séparer le flux de photon émis à l'aide d'une lame séparatrice, puis à analyser les variations temporelles d'intensité mesurées simultanément sur deux détecteurs. Ici, les deux APD fibrées sont connectées à un module de comptage de photon<sup>11</sup>. La mesure de la fonction d'autocorrélation repose sur le principe "Start-Stop". Lorsque l'APD 1 détecte un photon, un chronomètre est enclenché. Ce chronomètre est arrêté dès que l'APD 2 détecte un photon. Cette opération est répétée un grand nombre de fois et le temps qui sépare deux détections est reporté dans un histogramme des coïncidences. Dans le cas d'une source à photon unique, les photons sont émis un par un, d'où une probabilité nulle de détecter deux photons au même instant :  $g^2(0) = 0$ . Cet état est associé au dégroupement de photons. Par rapport à un fonctionnement utilisant une seule APD, cette méthode permet notamment une meilleure résolution temporelle en s'affranchissant du temps mort des APDs (de l'ordre de 40 ns), durant lequel aucun photon n'est détecté par la photodiode.

La fonction d'autocorrélation d'intensité, interprétée en terme de probabilité, s'écrit :

$$g^2(\tau) = \frac{P(t + \tau|t)}{P(t)}, \quad (3.24)$$

où  $P(t + \tau|t)$  décrit la probabilité conditionnelle de détecter un photon à l'instant  $t + \tau$ , sachant qu'un photon a été détecté à l'instant  $t$ . La fonction est normalisée par la probabilité de détecter un photon à n'importe quel moment  $P(t)$ . Pour un émetteur quantique, ces probabilités sont liées à la population du niveau excité. Une description simplifiée de la statistique d'émission d'un émetteur à photon unique peut s'obtenir à l'aide d'un système à deux niveaux. L'émetteur est pompé, en régime continu, de l'état fondamental  $|0\rangle$  vers l'état excité  $|1\rangle$  avec un taux d'excitation

---

11. PicoHarp 300, PicoQuant

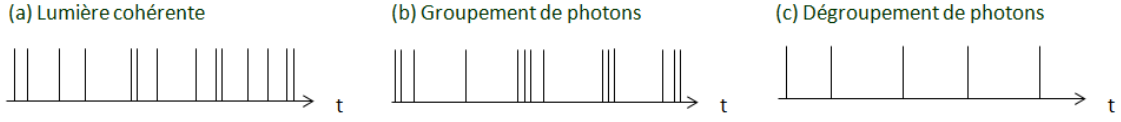


FIGURE 3.7 – Illustration d'un train de photon selon la statistique d'émission d'une source lumineuse.

$r$ . Le retour au niveau  $|0\rangle$  s'accompagne d'un photon avec un taux d'émission  $\gamma$ . L'évolution temporelle de la population du niveau excité est donnée par :

$$\frac{d\sigma_1(t)}{dt} = r\sigma_0(t) - \gamma\sigma_1(t), \quad (3.25)$$

où  $\sigma_0$  et  $\sigma_1$  sont les populations respectives des niveaux  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$ . Si à  $t=0$ , un photon vient juste d'être émis, alors  $\sigma_0(0) = 1$  et  $\sigma_1(0) = 0$ . D'où :

$$\sigma_1(t) = \frac{r}{r + \gamma} (1 - e^{-(r+\gamma)t}). \quad (3.26)$$

La probabilité conditionnelle est donnée par  $P(t + \tau|t) = \gamma\sigma_1(\tau)$  et la population stationnaire  $P(t) = \gamma\sigma_1(\infty)$ . On en déduit la fonction d'autocorrélation d'intensité :

$$g^2(\tau) = 1 - e^{-(r+\gamma)\tau} < 1. \quad (3.27)$$

Ce résultat est fondamentalement quantique et permet de distinguer les émetteurs quantiques de la lumière classique. En effet, dans le régime classique, l'autocorrélation d'intensité peut se réécrire :

$$g^2(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t + \tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle \langle I(t + \tau) \rangle}, \quad (3.28)$$

où  $I$  est l'intensité mesurée. D'après l'inégalité de Cauchy-Schwartz :  $\langle I^2(t) \rangle \geq \langle I(t) \rangle^2$  soit  $g^2(0) \geq 1$ . Le formalisme classique de la lumière ne permet donc pas de rendre compte du dégroupement de photons intrinsèque aux émetteurs quantiques. Nous rappelons la formulation quantique de la statistique de photons ci-dessous.

**Statistiques de photon** L'analyse statistique des photons permet de mettre en évidence la nature quantique d'une source lumineuse. Une source de photon unique peut être identifiée par le dégroupement de photons. La fonction d'autocorrélation temporelle associée à une onde plane, stationnaire monochromatique, peut s'écrire comme suit :

$$g^2(\tau) = \frac{\langle \hat{\mathbf{E}}^-(t)\hat{\mathbf{E}}^-(t + \tau)\hat{\mathbf{E}}^+(t + \tau)\hat{\mathbf{E}}^+(t) \rangle}{\langle \hat{\mathbf{E}}^-(t)\hat{\mathbf{E}}^+(t) \rangle \langle \hat{\mathbf{E}}^-(t + \tau)\hat{\mathbf{E}}^+(t + \tau) \rangle}, \quad (3.29)$$

où les opérateurs champs électriques sont définis par  $\hat{\mathbf{E}}^-(\mathbf{r}, t) = \sum_k \xi_k \mathbf{e}_k \hat{a}^\dagger e^{i(w_k t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}$  et  $\hat{\mathbf{E}}^+(\mathbf{r}, t) = \sum_k \xi_k \mathbf{e}_k \hat{a} e^{-i(w_k t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}$  avec  $\xi_k$  l'amplitude,  $\mathbf{e}_k$  la polarisation et  $w_k$  la

fréquence du mode  $k$ . Les opérateurs création  $\hat{a}^\dagger$  et annihilation  $\hat{a}$  vérifient les propriétés suivantes :

$$[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = 1 \quad (3.30)$$

$$\hat{a}|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle, \quad (3.31)$$

$$\hat{a}^\dagger|n+1\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle, \quad (3.32)$$

$$\hat{N} = \hat{a}^\dagger\hat{a} \quad \text{avec} \quad \hat{N}|n\rangle = n|n\rangle, \quad (3.33)$$

où  $|n\rangle$  désigne l'état quantique de Fock à  $n$  photons et  $\hat{N}$  l'opérateur nombre de photons. En utilisant ces propriétés, on peut montrer que pour une onde monomode et à délai nul  $\tau = 0$ , la fonction d'autocorrélation est donnée par :

$$g^2(0) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a} \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle^2} = 1 + \frac{\Delta \hat{n}^2 - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2}, \quad (3.34)$$

où l'écart type  $\Delta \hat{n} = \sqrt{\langle \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle^2}$  décrit les fluctuations de photons. En comparant les variations d'intensité de la source avec celles correspondant à une distribution de Poisson, les valeurs prises par  $g^2(\tau)$  permettent alors de classer la lumière en trois catégories.

- **Sources cohérentes**  $g^2(\tau) = 1$  : La source émet une lumière cohérente, c'est à dire avec un temps de cohérence infini, comme celle produite par un laser idéal. Elle correspond aux états propres de l'opérateur annihilation, décrits par une loi de Poisson :

$$\hat{a}|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle \quad \text{avec} \quad |\alpha\rangle = e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \sum_{n \geq 0} \frac{\alpha^n}{n!} |n\rangle. \quad (3.35)$$

Quelque soit  $\tau$ , on a  $g^2(\tau) = 1$ . Comme illustré sur la Fig. 3.7(a), il n'y a aucune corrélation entre les photons détectés.

- **Sources chaotiques**  $g^2(\tau) > 1$  : Les fluctuations d'intensité sont supérieures à celles de la référence poissonnienne. La lumière dite super-poissonnienne caractérise les sources chaotiques ou thermiques. Une photodétection sur une voie augmente de la probabilité de détection sur l'autre voie. Les photons arrivent groupés par paquets sur les détecteurs (Fig. 3.7(b)). On parle de groupement de photons (*bunching*).
- **Sources quantiques**  $g^2(\tau) < 1$  : Les sources quantiques sont décrites par les états de Fock, des états propres de l'opérateur nombre  $\hat{N}|n\rangle = n|n\rangle$ , d'où :

$$g^2(0) = 1 - \frac{1}{n}. \quad (3.36)$$

Cette statistique de photon est dite sub-poissonnienne. Dans le cas d'une source à photon unique, on a  $n = 1$  soit  $g^2(0) = 0$ . Cet état est associé au dégroupement de photons (*antibunching*), c'est à dire que les photons sont émis un par un (Fig. 3.7(c)). La probabilité de détecter deux photons au même instant est donc nulle. Ce résultat fondamentalement quantique et permet de distinguer les émetteurs quantiques de la lumière classique.

**Mesure expérimentale du  $g^2(\tau)$**  Dans le cadre de notre étude, cet interféromètre HBT nous servira à caractériser des nanocristaux de diamant. Ces derniers contiennent des centres colorés azote-lacunes NV qui peuvent agir comme des émetteurs quantiques. Dans le cas où le système est formé de  $N$  émetteurs à deux niveaux [51, 52], on a :

$$g_N^2(\tau) \simeq 1 - \frac{e^{-(r+\gamma)\tau}}{N}. \quad (3.37)$$

Ainsi, la mesure à délai nul  $g_N^2(0)$  nous permettra d'estimer le nombre de centres NV présents dans un nanodiamant. Précisons que les données expérimentales fournies par l'histogramme brut doivent être traitées afin de reproduire la fonction d'autocorrélation. La normalisation et les corrections appliquées au signal pour remonter à la fonction d'autocorrélation sont résumées ci-dessous, dont les détails peuvent être trouvés dans [45, 52] :

1. Un délai électronique a été ajouté artificiellement sur la voie 2 du HBT pour accéder aux valeurs de délais négatifs. Il correspond au cas où un photon est détecté en premier sur l'APD 2. L'histogramme est corrigé de manière à centrer l'échelle autour de  $t = 0$ .
2. L'histogramme brut, noté  $C_0(\tau)$ , est normalisé comme suit :

$$C_1(\tau) = \frac{C_0(\tau)}{N_1 N_2 T W}, \quad (3.38)$$

où  $N_1 \approx N_2 \approx N$  sont les taux de comptage respectifs sur la voie 1 et 2 (10-100 kHz),  $T$  est le temps total d'intégration de la mesure et  $W=512$  ps est la largeur temporelle d'un canal de l'histogramme.

3. Le rapport signal à bruit est donné par  $\rho = S/(S+B)$ , où  $S$  est le signal utile provenant de la fluorescence des nanodiamants et  $B$  le bruit de fond. En mesurant  $B$  sur une zone de l'image sans diamant et  $(S+B)$  à la position d'un nanocristal, on peut remonter à  $S$ . Comme démontré dans [45], la fonction d'autocorrélation associée à l'émetteur est donnée par :

$$C_2(\tau) = \frac{C_1(\tau) - (1 - \rho^2)}{\rho^2}. \quad (3.39)$$

4. Enfin, une dernière étape consiste à corriger l'histogramme pour des longs délais. En effet, le système de comptage mesure la probabilité de détecter un photon à l'instant  $\tau$  sachant qu'un photon a été détecté à l'instant 0 et qu'aucun autre photon n'a été détecté pendant ce temps. Or plus  $\tau$  est important, plus cette probabilité devient faible et s'écarte de la définition théorique du  $g^2(\tau)$ , qui n'impose aucune condition sur le nombre de photons détectés dans cet intervalle. Finalement, après cette dernière correction, nous en déduisons la fonction d'autocorrélation [52] :

$$g^2(\tau) = C_2(\tau)e^{N\tau}. \quad (3.40)$$



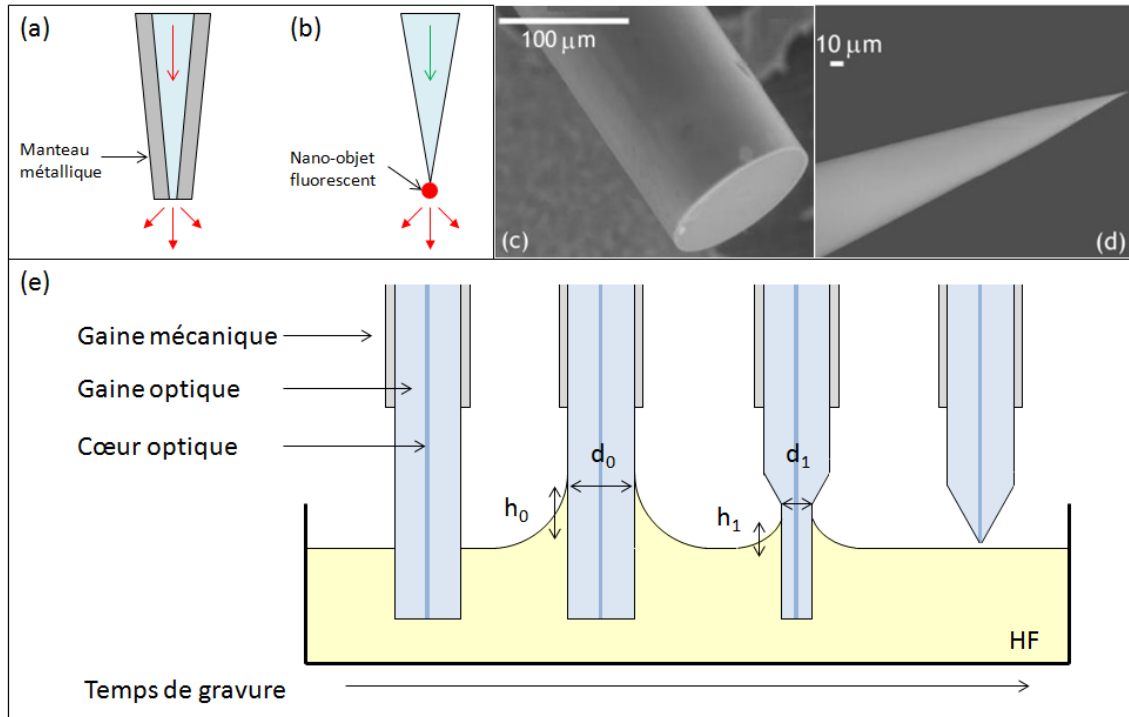


FIGURE 3.8 – (a) Schéma d’une pointe métallisée à ouverture et (b) d’une sonde active fonctionnalisée avec un émetteur fluorescent. (c) Images MEB d’une fibre optique avant gravure, (d) après gravure. Figures tirées de [45]. (e) Principe de fabrication par attaque chimique simple.

### 3.5.3 Fabrication des sondes locales optiques

Les sondes locales SNOM utilisées au cours de ma thèse sont fabriquées en interne à l’Institut Néel par G. Julie et J-F. Motte du pôle Nanofab. Dans cette partie, je décris le mode opératoire de fabrication de deux types de sondes mises en oeuvre pour la caractérisation de mes échantillons : une pointe à nano-ouverture (Fig. 3.8(a)) et une sonde active fonctionnalisée avec un nanodiamant (Fig. 3.8(b)).

#### Élaboration des pointes optiques

Les sondes SNOM sont fabriquées à partir de fibres optiques standards dont l’une des extrémités est effilée pour former la pointe optique. Une fibre optique est traditionnellement constituée de silice ( $SiO_2$ ), formée d’une gaine optique et d’un cœur, dans lequel se propage la lumière (Fig. 3.8(e)). L’indice de réfraction du cœur étant supérieur à celui de la gaine optique, la lumière reste confinée au niveau du cœur et son guidage le long de la fibre optique se fait par réflexion totale interne. Une couche extérieure en plastique protège la gaine optique et facilite la manipulation de la fibre optique.

Au laboratoire, l’amincissement de la fibre est obtenue par attaque chimique à l’acide fluorhydrique (HF) qui dissout la silice. Le principe général est le suivant

(Fig. 3.8(e)) : lorsque la fibre est plongée dans le HF, un ménisque se forme autour de celle-ci. La hauteur du ménisque  $h_0$  est proportionnelle au diamètre initial de la fibre  $d_0$ . Au fur et à mesure que le HF dissout la silice, le diamètre de la fibre, en même temps que la hauteur du ménisque, décroît ( $d_1 < d_0$ ,  $h_1 < h_0$ ) jusqu'à ce qu'il se forme un cône à l'apex de la fibre ( $d = h = 0$ ).

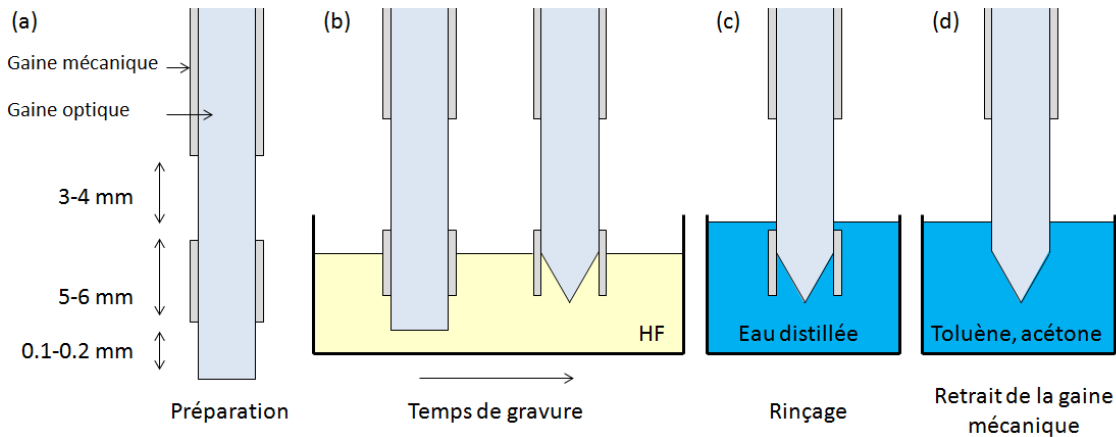


FIGURE 3.9 – Principe de fabrication des pointes optiques au laboratoire : (a) Préparation de la fibre optique, (b) gravure par tube etching, (c) rinçage à l'eau distillée, (d) élimination de la gaine mécanique.

Cependant, la rugosité et la forme résultante de l'apex varient sensiblement avec les conditions expérimentales (alignement, températures, vibrations). Pour en limiter les effets, la méthode employée au laboratoire se base sur le procédé du *tube etching* [53]. L'approche consiste à isoler et à guider la gravure en laissant la gaine mécanique, imperméable au HF, lors de l'attaque. Le liquide remonte par capillarité le long des parois et des mouvements de convection sont créés assurant un profil symétrique de la pointe par rapport à l'axe de la fibre. La gaine permet également de protéger la réaction chimique des perturbations extérieures. Les étapes de fabrication au laboratoire sont les suivantes :

1. Tout d'abord, la fibre optique est partiellement dénudée comme illustré sur la Fig. 3.9(a), puis montée sur un support qui permettra de produire jusqu'à 6 fibres en même temps. La préparation de la fibre facilitera le retrait de la gaine mécanique, une fois la gravure chimique achevée. Un dénudage et un clivage précis des fibres sont requis car cette préparation préalable peut conditionner la qualité et l'homogénéité des pointes optiques.
2. Cette étape est suivie d'une l'attaque chimique de 2h à température ambiante, au cours de laquelle, le ménisque formé dans la gaine garantit une gravure dans l'alignement de la fibre (Fig. 3.9(b)).
3. Enfin, pour stopper la réaction, la fibre est immergée dans de l'eau distillée puis successivement dans du toluène et de l'acétone pour éliminer la gaine mécanique (Fig. 3.9(c-d)).

Ces deux dernières étapes sont réalisées par le pôle Nanofab. Par ce procédé, jusqu'à six pointes peuvent être produites simultanément avec un angle d'une quinzaine de degrés à l'apex. Comparée à d'autres techniques, telles que la gravure FIB ou l'étirage à chaud par exemple, cette méthode a l'avantage d'être peu coûteuse et rapide. De plus, le cœur optique est conservé jusqu'à l'extrémité de la fibre et n'est pas fondu avec la gaine optique, assurant ainsi un meilleur contrôle et une bonne luminosité à l'apex. Une fois effilées, nous procédons ensuite soit à la métallisation des fibres optiques pour l'élaboration des sondes à ouvertures, soit à la fonctionnalisation avec un nanocrystal fluorescent pour former une sonde active.

### Pointes à ouverture

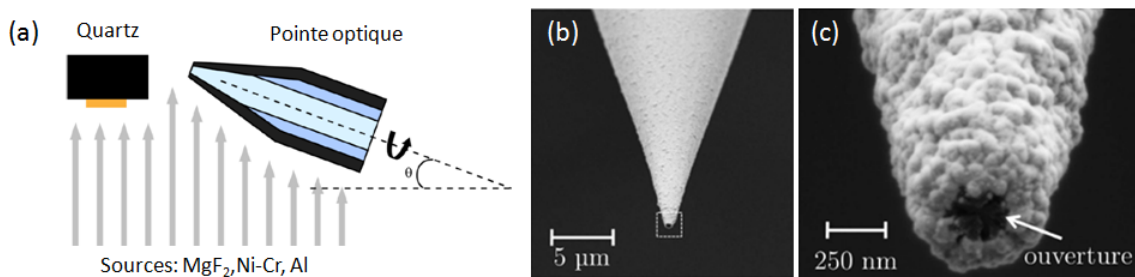


FIGURE 3.10 – (a) Principe de la métallisation par ombrage. (b) Image MEB d'une pointe à ouverture réalisée au laboratoire. (c) Zoom sur l'ouverture de diamètre d'environ 200 nm. Tirées de [45].

On désigne par pointe à ouverture une sonde SNOM dont le rôle est de servir de nano-source (ou nano-détecteur) de lumière de taille sub-longueur d'onde. En bout de fibre, le profil effilé de la pointe est tel que la taille du cœur devient inférieure à celle du mode guidé. La lumière n'est plus confinée et fuit latéralement. Afin de créer une source quasi-ponctuelle, la pointe est recouverte d'un manteau opaque métallique, ce qui a pour effet de former une ouverture nanométrique et de confiner la lumière à l'extrémité.

Le procédé de métallisation, utilisé au laboratoire, repose sur l'évaporation par ombrage. Du fait de son absorption élevée ( $10^6 \text{ cm}^{-1}$ ), le métal choisi pour bloquer les fuites de lumière est l'aluminium. Au sein de la chambre d'évaporation, les matériaux à déposer sont contenus dans un creuset qui, chauffé par effet Joule, entraîne l'évaporation des éléments qui se condensent ensuite sur la fibre. Les fibres sont montées sur un moteur en rotation tournant à une vitesse constante (60 tr/min) dont l'axe de rotation est incliné d'environ  $15^\circ$ . Afin de maintenir une ouverture à l'extrémité de la pointe et éviter qu'elle ne soit recouverte de métal, un méplat est créé artificiellement. Pour cela, on réalise, au préalable, un dépôt d'un matériau dont les propriétés optiques sont proches de celles de la silice, ici du fluorure de magnésium ( $MgF_2$ ). Ce dépôt est suivi d'une couche d'adhésion ( $Ni - Cr$ ) puis d'une épaisseur opaque de 100 nm d'aluminium, soit environ 10 fois son épaisseur de peau. Par ce procédé, nous produisons des pointes à ouverture dont le diamètre

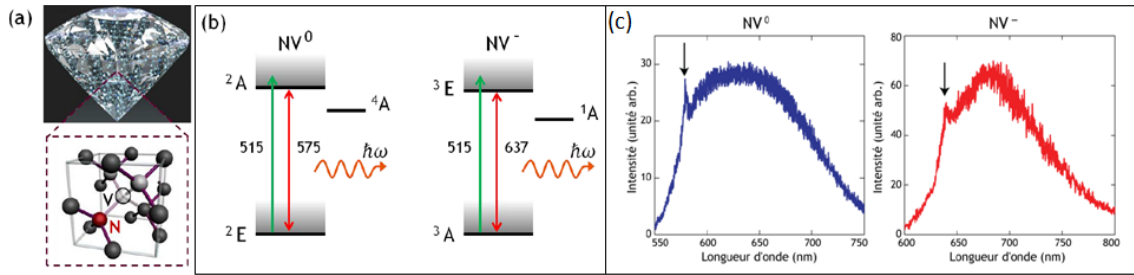


FIGURE 3.11 – (a) Illustration de la structure atomique d’un centre NV dans une maille diamant. (b) Représentation simplifiée de la structure électronique des centres NV<sup>0</sup> et NV<sup>-</sup> : les transitions électroniques sont exprimées en nanomètres. (c) Spectres d’émission des centres NV<sup>0</sup> et NV<sup>-</sup> où la ZPL est indiquée par une flèche. Tirées de [45].

typique est de l’ordre de  $100 - 300 \text{ nm}$ . Celles-ci sont fabriquées à partir de fibres optiques opérant entre  $400 - 680 \text{ nm}$ <sup>12</sup> et seront utilisées pour exciter directement les plasmons de surface en champ proche à  $\lambda = 633 \text{ nm}$ .

### Fonctionnalisation d’une pointe optique avec un nanodiamant

Le concept de sonde active a été introduite par Kopelman en 1990 [54] afin de surpasser les résolutions optiques obtenues par les sondes à ouvertures, limitées autour de  $50 \text{ nm}$  par la taille de l’ouverture. L’idée consiste à fixer un nano-objet fluorescent (molécules organiques, nanocristaux, nanoparticules semiconductrices) au bout d’une pointe SNOM de sorte que la résolution optique soit déterminée par les dimensions de la nano-source et non plus par l’ouverture. Au delà de l’intérêt pour l’imagerie, la faculté de manipuler un nano-émetteur avec une précision nanométrique a été particulièrement exploitée pour cartographier la densité locale d’états optiques (LDOS) dans un environnement contrôlé.

Dans ce travail, nous avons choisi de travailler avec des centres NV dans le diamant. Par rapport à d’autres sources, ils présentent une photostabilité élevée à température ambiante. En effet, un inconvénient des sources basées sur les molécules réside dans leur manque de photo-stabilité. Une excitation optique engendre une transformation chimique qui altère leurs propriétés d’émission, phénomène connu sous le nom de photo-blanchiment. De plus, les centres NV présentent un taux de répétition élevé. Après une brève discussion sur les propriétés optiques des centres NV dans les nano-diamants, description que nous limiterons aux caractéristiques clés se rapportant à notre étude, nous présenterons le mode opératoire que nous avons suivi pour la fonctionnalisation d’une pointe optique.

**Généralités sur les centres NV dans les nano-diamants** La sonde active utilisée dans ce travail est formée par une pointe optique fonctionnalisée avec un nano-diamant contenant des centres colorés azote-lacune (*Nitrogen Vacancy*, NV).

12. Thorlabs 405 HP

Un centre NV est une impureté constituée d'un atome d'azote (*nitrogen* N) en substitution à un atome de carbone et associé à une lacune de carbone (*vacancy* V) présente sur un site adjacent dans la maille cristalline (Fig 3.11(a)). On désigne ces défauts de centres colorés car ils peuvent être fluorescents et produire une coloration du diamant. L'existence des centres NV individuels dans le diamant massif a été mise en évidence expérimentalement par Gruber et al. en 1997 [55]. Un centre NV est un émetteur à photon unique doté d'une efficacité quantique autour de 1 qui assure une émission d'un photon après chaque excitation. De plus, isolé dans une matrice robuste de diamant, le centre NV est facile à manipuler et il est photostable à température ambiante. Du fait de ses propriétés, les centres NV sont considérés comme des sources quantiques pratiques, efficaces et donc attrayantes pour des applications dans l'optique quantique.

Il existe deux types de centres NV : les centres  $NV^0$  neutres mettant en jeu 5 électrons et les centres  $NV^-$  chargés négativement, comptant 6 électrons. Ces derniers représentent la majorité des centres rencontrés dans nos études et seront simplement désignés par centres NV. Leurs structures électroniques est représentées sur la Fig 3.11(b). En première approximation, à faible puissance d'excitation, les centres NV peuvent être décrits par un modèle à 2 niveaux pour lequel la transition optique entre le niveau fondamental et le niveau excité se caractérise par une résonance à zéro phonon (*Zero Phonon Line*, ZPL). De plus, le couplage fort aux phonons de la matrice de diamant se traduit par un continuum de niveau d'énergie vibrationnelle sur chaque niveau électronique. Par conséquent, les centres NV peuvent être excités optiquement de manière non-résonnante avec un photon d'énergie supérieure à celle de la ZPL, qui se situe à 638 nm pour le  $NV^-$ . Dans notre cas, la longueur d'onde d'excitation sera de  $\lambda = 532 \text{ nm}$ . Après relaxation non-radiative (quelques picosecondes), la désexcitation de l'électron vers le niveau fondamental s'accompagne de l'émission spontanée d'un photon à  $\lambda = 638 \text{ nm}$ . La durée de vie de l'état excité est de l'ordre de 10 à 20 ns. Les fortes interactions électron-phonon sont responsables de l'élargissement du spectre autour de la raie ZPL mais assure en contre partie la photostabilité du centre NV, qui est isolé des perturbations extérieures par la matrice de diamant.

Par ailleurs, selon le taux d'impuretés d'azote, les diamants sont classifiés en deux catégories : le type I qui englobe les diamants constitués majoritairement d'impuretés d'azote et le type II dont la concentration d'azote est inférieure à  $10^{17}$  atomes/cm<sup>3</sup>. La plupart des diamants naturels sont de type I. On distingue les diamants de type Ia où les impuretés d'azote forment des agrégats, du type Ib dans lesquels les atomes d'azote sont isolés, en substitution à des atomes de carbone. Cette dernière catégorie rassemble la majorité des diamants synthétiques, comme ceux utilisés dans cette thèse. Les nanodiamants ont été synthétisés par Géraldine Dantelle et Thierry Gacoin, au laboratoire LPMC (École Polytechnique, Palaiseau) [56]. Ils sont obtenus à partir de poudre de nanodiamants contenant naturellement des impuretés d'azote. Pour créer des lacunes, le cristal est irradié avec des protons ou des électrons de hautes énergies (13.6 MeV). Un traitement thermique à 800°C permet ensuite la diffusion puis la recombinaison des lacunes avec les impuretés pour former les centres

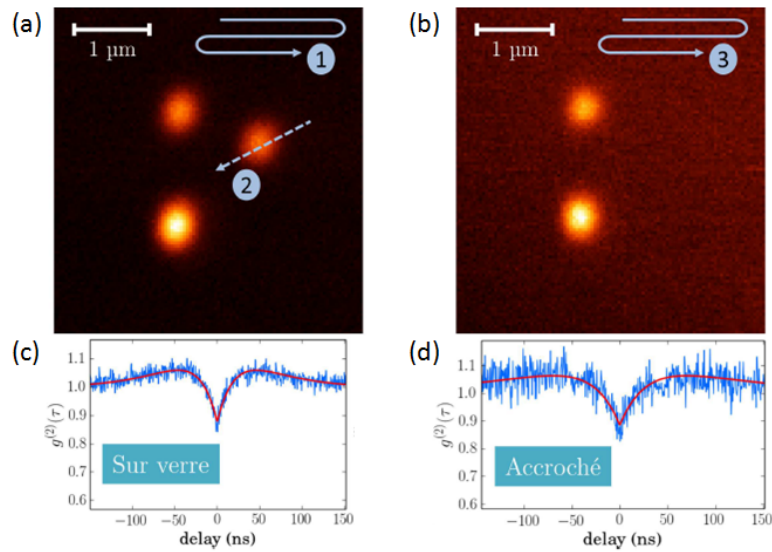


FIGURE 3.12 – Méthode de fonctionnalisation d’une sonde SNOM avec un nanocristal de diamant : (a) Repérage du nanodiamant : 1) Scan de l’échantillon avec un faisceau laser focalisé, 2) accroche du nanodiamant. (b) L’absence du nanodiamant à la surface de l’échantillon confirme le greffage en bout de pointe. (c) Mesure de la fonction d’autocorrélation avant accroche et (d) après accroche sur la pointe. Reproduits d’après [52].

NV.

**Fonctionnalisation de la pointe optique** La première sonde active à base de centre NV a été démontrée par S. Kuhn et al [57]. Au laboratoire, cette étude a été initié par A. Cuche durant sa thèse [51]. La fonctionnalisation du nanocristal se déroule essentiellement en trois étapes : le repérage par microscopie confocale du nanodiamant à greffer, la sélection du nanodiamant après mesure de  $g^2(\tau)$  puis l’accroche du nanocristal. Ce dernier est greffé sur une pointe optique non métallisée<sup>13</sup>, opérant à la longueur d’onde d’excitation 532 nm.

La première étape consiste donc à repérer le nanocristal. Une gouttelette de solution colloïdale de nanodiamants est premièrement déposée sur un substrat de verre. Une fois le solvant évaporé, la sélection du nanodiamant à greffer sur la pointe optique est réalisée par microscopie confocale (Fig. 3.12) : l’échantillon est illuminé avec un faisceau laser de longueur d’onde  $\lambda = 532 \text{ nm}$  puis scanné (cf montage Fig. 3.6). Un miroir dichroïque ( $M_1$ ), réfléchit le faisceau laser vers l’échantillon et envoie la fluorescence des nanodiamants vers les détecteurs tout en filtrant le faisceau d’excitation. Un deuxième filtrage à l’aide d’un filtre passe-haut ( $F$ ) coupe les signaux de longueurs d’ondes inférieures à 578 nm. Comme illustré sur la Fig. 3.12(c), l’émission des nanodiamants est ensuite analysée par le corrélateur HBT afin de mesurer de la fonction d’autocorrélation.

13. Nufern

Pour accrocher le nanodiamant sélectionné, une image est effectuée au préalable à l'aide de la pointe optique. Comme le filtre bloque majoritairement le signal optique d'excitation, l'émission de la pointe sans nanodiamant et capturée par les APD est très faible (Fig. 3.12(a)). Elle correspond au bruit de fond dans les zones de l'échantillon sans diamant. La pointe est ensuite amenée en champ proche puis balayée latéralement à grande vitesse à travers le nanodiamant. En scannant rapidement la pointe, on diminue le temps disponible de rétroaction, augmentant ainsi la probabilité d'établir un contact avec le nanodiamant et donc son accroche. Par cette méthode, les interactions électrostatiques entre la pointe optique et le nanodiamant permettent de déplacer le nanodiamant en bout de pointe. Pour accrocher le nanocrystal, cette opération est répétée jusqu'à ce qu'une soudaine augmentation de la fluorescence soit détectée (Fig. 3.12(b)). En effet, le greffage se traduit par un accroissement brusque du bruit de fond correspondant à la fluorescence en bout de pointe du nanodiamant. La présence du nanocrystal est ensuite confirmée par une mesure de  $g^2(\tau)$  au dessus d'une zone sans nanodiamant (Fig. 3.12(d)).

Comme démontré dans [51, 45, 52], il est possible de faciliter l'accroche du nanocrystal à l'aide d'un polymère transparent chargé positivement (poly-l-lisine). En enrobant la pointe optique de polymère, les nanodiamants chargés négativement, se fixent plus aisément à la sonde. En raison de la solidité des liaisons entre le polymère et les nanodiamants, nous avons privilégié dans notre étude une fonctionnalisation sans polymère afin de pouvoir déplacer et éventuellement redéposer les nanocristaux plus facilement.

## 3.6 Conclusion

Nous avons introduit les deux instruments optiques utilisés dans notre étude pour la caractérisation des systèmes plasmoniques chiraux. Ils s'appuient respectivement sur le couplage diffractif en champ lointain et la microscopie en champ proche, en mode illumination. En ce qui concerne la détection, la majorité des techniques employées dans la littérature, pour imager directement les champs évanescents repose sur la microscopie en champ proche (SNOM en mode collection). Les temps d'acquisition peuvent être long et les résultats peuvent fortement varier selon la qualité des sondes. Dans ce projet, nous avons opté pour un découplage plasmonique en ondes propagatives, afin de pouvoir bénéficier des nombreux avantages de l'imagerie en espace libre : détection LRM, filtrage spatial des signaux optiques, caractérisation dans l'espace réciproque et analyse en polarisation des plasmons de surface.

# Chapitre 4

## Chiralité optique mixte 2D et 3D dans les systèmes plasmoniques

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>69</b>
<b>4.2</b>	<b>Matrices de Jones chirales</b>	<b>71</b>
4.2.1	Condition de chiralité optique	71
4.2.2	Critères de chiralité optique 3D	72
4.2.3	Critères de chiralité 2D	74
<b>4.3</b>	<b>Réponse en polarisation d'une nano-ouverture rectangulaire</b>	<b>76</b>
4.3.1	Ellipses de polarisation	76
4.3.2	Matrice de Jones chirales	77
4.3.3	Contribution du dipôle $p^{\parallel}$	79
<b>4.4</b>	<b>Modèle théorique dipolaire d'un <math>\Lambda</math> idéal</b>	<b>80</b>
4.4.1	Modélisation	80
4.4.2	Simulations	81
<b>4.5</b>	<b>Chiralité mixte 2D et 3D</b>	<b>82</b>
4.5.1	Défauts structuraux planaires et volumiques	83
4.5.2	Réduction des défauts d'asymétrie	85
<b>4.6</b>	<b>Description de la chiralité mixte par le modèle microscopique de Kuhn</b>	<b>87</b>
<b>4.7</b>	<b>Conclusion</b>	<b>90</b>

---

### 4.1 Introduction

L'étude de la chiralité est d'une importance cruciale parce que les organismes vivants sont constitués par un grand nombre de molécules chirales. Deux configurations chirales opposées, ou énantiomères, peuvent produire des processus physiologiquement distincts. La discrimination énantiomérique est donc critique pour l'industrie pharmaceutique. Nous avons vu qu'un milieu chiral pouvait donner lieu à des effets de polarisation tels que le pouvoir rotatoire ou le dichroïsme circulaire. Ces



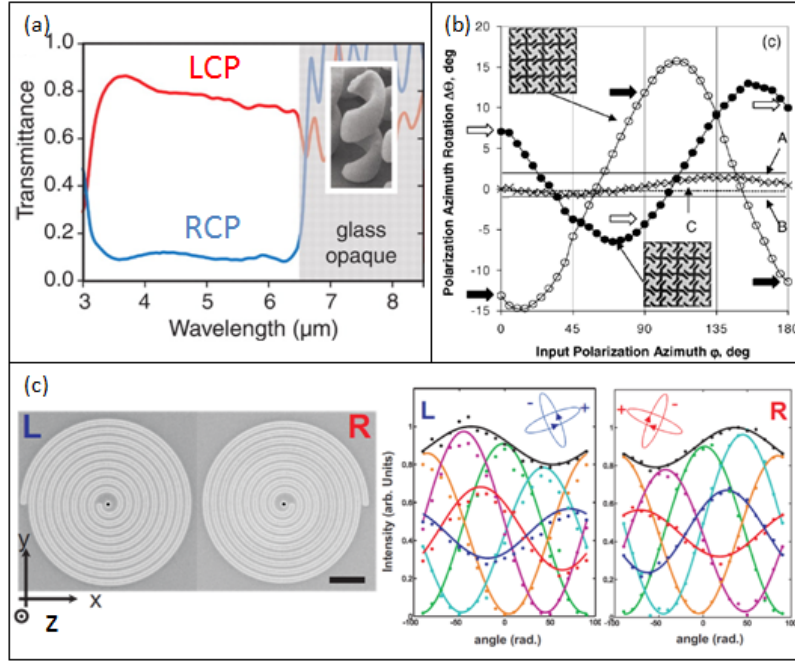


FIGURE 4.1 – (a) Transmittance en fonction de la longueur d’onde à travers un métamatériau formée d’hélices en or : la polarisation circulaire incidente est bloquée par le système si l’orientation est similaire à celle des hélices. Tirée de [58]. (b) Rotation de la polarisation réfléchi par un réseau formé de "gamadions" : les courbes formées de (●) et (○) correspondent respectivement à des gamadions orientés à droite et à gauche, celle avec (×) a été mesurée sur un film non structuré. Tirée de [59]. (c) Images MEB des spirales plasmoniques. Intensité transmise en fonction de l’angle de rotation de la polarisation linéaire incidente. Les courbes verte, jaune, cyan, magenta, rouge et bleue correspondent respectivement à une analyse selon  $X$ ,  $Y$ ,  $+45^\circ$ ,  $-45^\circ$ ,  $L$  et  $R$ . L’intensité totale est représentée en noire. Tirée de [18].

effets sont cependant très faibles. Pour augmenter la sensibilité de ces effets, les nanostructures plasmoniques ont été intensivement étudiées. En raison de l’exaltation du champ associé aux plasmons localisés et grâce à une sensibilité élevée au milieu environnant [60], elles pourraient jouer un rôle clé pour améliorer les interactions entre les molécules chirales avec lumière. Dans ce contexte, de nombreuses recherches ont étudié et exploité les propriétés optiques des milieux chiraux 3D [61]. Par exemple, Hansel et al. ont élaboré un polariseur circulaire large bande à partir d’un métamatériau constitué d’hélices métalliques [58] (Fig. 4.1(a)). Or, les phénomènes de chiralité optique rencontrés dans les systèmes chiraux 3D diffèrent intrinsèquement des effets chiraux purement 2D [2]. Seuls quelques travaux fondamentaux ont été consacrés au comportement chiral 2D induit par des structures plasmoniques planaires [59, 62, 18, 2, 63]. Le groupe de N. I. Zheludev a notamment rapporté l’observation d’activité optique dans des "gammadions" planaires (Fig. 4.1(b)) [64, 65, 66, 67]. Or, comme nous le verrons dans ce chapitre, l’activité optique est un phénomène invariant par rotation donc de chiralité 3D. Ces effets ne sont donc pas la signature d’une chiralité purement 2D, mais résultent d’une brisure de symétrie 3D. Celle-ci peut, par exemple, s’expliquer par la présence d’un

substrat ou encore par des défauts de fabrication de volume [68]. Drezet et al. ont toutefois montré qu’une véritable chiralité planaire pouvait être induite dans des spirales plasmoniques (Fig. 4.1(c)). Pour cela, les auteurs ont exploité notamment les propriétés de confinement 2D et de dissipation des plasmons de surface, essentielles à la chiralité optique 2D [18].

Dans ce chapitre, nous allons nous appuyer sur ces propriétés de chiralité 2D et 3D afin de mettre en évidence l’existence de défauts géométriques dans nos échantillons : des réseaux formés de  $\Lambda$  qui sont en théorie non-chiraux. Cette étude a été notamment motivée par des difficultés rencontrées lors des expériences de SHEL réciproque. Dans la continuité des travaux réalisés dans [38], nous souhaitons démontrer le potentiel de ces systèmes dans une expérience de brouillage d’interférence. Cependant, les premiers échantillons fabriqués ne produisaient pas la réponse escomptée, c’est à dire le découplage des plasmons en ondes polarisées circulairement. Pour en comprendre l’origine, nous avons mené un examen approfondi des échantillons et établi une méthode de caractérisation, non-invasive, basée sur l’analyse des matrices de Jones chirales. Nous avons pu identifier l’existence d’une chiralité mixte 2D et 3D, phénomène qui à notre connaissance n’a été jamais été rapporté dans des systèmes plasmoniques. Après avoir introduit les critères de chiralité que doivent remplir les matrices de Jones associées à des milieux chiraux 2D et 3D, nous mènerons, dans un premier temps, une analyse sur un système de référence constitué d’une nano-ouverture rectangulaire soit l’élément de base formant les  $\Lambda$ . Dans un second temps, nous mettrons en oeuvre cette méthode d’analyse afin d’identifier les imperfections 2D et 3D au sein de nos échantillons. Une interprétation microscopique des matrices de Jones chirales sera également discutée à l’aide du modèle de Kuhn. Enfin, grâce au protocole développé, nous montrerons que la qualité de nos échantillons peut être améliorée et ainsi conduire à la démonstration du mécanisme de SHEL réciproque, dont les résultats seront présentés au chapitre suivant.

## 4.2 Matrices de Jones chirales

Dans cette première partie, nous revenons sur les propriétés optiques fondamentales associées aux systèmes chiraux. En particulier, comme discuté dans [2], il existe une relation étroite entre le comportement chiral d’un milieu et le théorème de réciprocité. Cette connection permet de distinguer deux classes de chiralité aux propriétés bien distinctes : la chiralité 3D et 2D [69]. La réponse optique du milieu est décrite ici en terme de matrices de Jones et nous verrons que celles-ci doivent répondre à des critères bien spécifiques. Ils nous permettront de discriminer ces deux classes de chiralité optique.

### 4.2.1 Condition de chiralité optique

Dans un premier temps, établissons le critère général qui détermine le caractère chiral d’un milieu. Par définition, un système est chiral s’il ne peut pas se superposer à son image-miroir. L’image-miroir est aussi appelée énantiomère (Fig. 4.2). Pour déterminer l’image-miroir d’un système, caractérisé par une matrice de Jones du

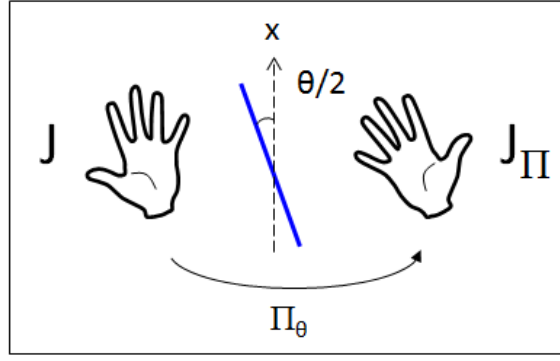


FIGURE 4.2 – Application de l'opérateur symétrie miroir  $\Pi_\theta$  à un système chiral décrit par une matrice de Jones  $J$ . L'axe de symétrie est symbolisé par la droite bleue.

type  $J = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$  ( $A, B, C$  et  $D \in \mathbb{C}$ ), nous appliquons l'opérateur symétrie-miroir  $\Pi_\theta$ , tel que :

$$J_\Pi = \Pi_\theta \cdot J \cdot \Pi_\theta^{-1} \quad \text{avec} \quad \Pi_\theta = \begin{pmatrix} \cos(\theta) & \sin(\theta) \\ \sin(\theta) & -\cos(\theta) \end{pmatrix}, \quad (4.1)$$

où  $\theta/2$  est l'angle entre l'axe de symétrie et  $\hat{x}$ .  $J_\Pi$  décrit la matrice de Jones associée à l'énantiomère du système chiral. La condition de chiralité est donc donnée par :  $J \neq J_\Pi$ . Elle se traduit sur la matrice de Jones par :

$$J_{\text{Chiral}} \neq \begin{pmatrix} A + B \cos(\theta) & \sin(\theta) \\ \sin(\theta) & A - B \cos(\theta) \end{pmatrix} = J_{\text{Non-chiral}}. \quad (4.2)$$

Ainsi, un système est chiral si sa matrice de Jones respecte :  $J \neq J_{\text{Non-chiral}}$ . Nous allons maintenant démontrer que la chiralité optique peut se décliner sous 2 formes : la chiralité 3D ou chiralité 2D.

#### 4.2.2 Critères de chiralité optique 3D

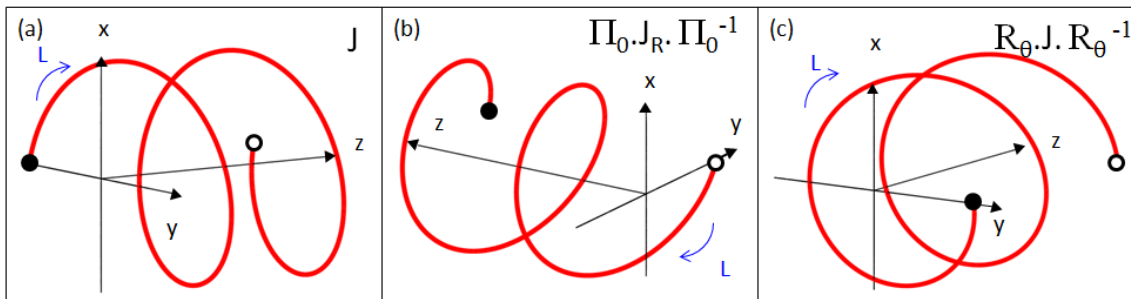


FIGURE 4.3 – (a) Illustration d'une hélice comme exemple d'objet chiral 3D. (b) Renversement de la direction d'observation. (c) Application de l'opérateur rotation  $R_\pi$ .

Commençons par considérer les effets optiques induits par des systèmes chiraux 3D. Pour cela, nous prenons l'exemple d'une hélice tournant dans le sens horaire (Fig. 4.3(a)). Comme illustré sur la Fig. 4.3(b), nous devons retrouver la même hélice quelque soit le sens d'observation  $Oz$ . Son sens de rotation est conservé quand on inverse le chemin de la lumière. Cette opération, qui consiste à inverser la direction d'observation, se traduit sur la matrice de Jones de la manière suivante :

$$J_{\text{Flip}} := \Pi_0 \cdot J_R \cdot \Pi_0^{-1}, \quad (4.3)$$

avec  $J_R$  est la matrice réciproque. La matrice réciproque décrit le système vu, lorsque le chemin de la lumière est inversé. D'après le théorème de réciprocité, elle est donnée par :

$$J_R = J^T = \begin{pmatrix} A & C \\ B & D \end{pmatrix}, \quad (4.4)$$

où  $T$  est l'opérateur transposé. Du fait de la taille finie de l'hélice, nous ne retrouvons pas strictement la même hélice de départ de la Fig. 4.3(a). A l'aide des cercles noirs et blanc à l'extrémité de l'hélice (Fig. 4.3), on constate que  $J_{\text{Flip}}$  décrit le cas où celle-ci est tournée d'un angle  $\theta = \pi$  autour de l'axe  $Oz$ . Pour retrouver la configuration initiale, nous devons appliquer une rotation telle que :

$$\Pi_0 \cdot J_R \cdot \Pi_0^{-1} = R_\theta \cdot J \cdot R_\theta^{-1}, \quad (4.5)$$

avec  $R_\theta$  la matrice de rotation autour de l'axe  $Oz$  :

$$R_\theta = \begin{pmatrix} \cos(\theta) & \sin(\theta) \\ -\sin(\theta) & \cos(\theta) \end{pmatrix}. \quad (4.6)$$

L'Eq. 4.5 constitue la condition générale de chiralité optique 3D. Après résolution, nous trouvons que la matrice de Jones associée à la chiralité optique 3D doit obligatoirement être de la forme suivante :

$$J_{3D} = \begin{pmatrix} 0 & \gamma \\ -\gamma & 0 \end{pmatrix}, \quad \gamma \in \mathbb{C}. \quad (4.7)$$

On en déduit que les milieux chiraux 3D sont décrits par  $J_{3D}$ , une matrice anti-symétrique qui prend la forme d'une matrice de rotation de facteur gyromagnétique  $|\gamma|$ .

### Polarisations propres

Déterminons maintenant les états propres caractéristiques de ces milieux chiraux 3D. Nous rappelons que les vecteurs et valeurs propres d'une matrice  $J = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$  sont donnés par :

$$\mathbf{E}_\pm = \frac{1}{\sqrt{|B|^2 + |\lambda_\pm - A|^2}} \begin{pmatrix} B \\ \lambda_\pm - A \end{pmatrix}, \quad (4.8)$$

$$\lambda_\pm = \frac{1}{2} \left( (A + D) \pm \sqrt{(A - D)^2 + 4BC} \right). \quad (4.9)$$

En résolvant, l'équation aux valeurs propres  $J_{3D}\mathbf{E}_{\pm} = \lambda_{\pm}\mathbf{E}_{\pm}$ , nous trouvons que les états propres sont donnés par des polarisations orthogonales :

$$\mathbf{E}_{\pm} = \begin{pmatrix} 1 \\ \pm i \end{pmatrix} \quad \text{avec} \quad \lambda_{\pm} = \pm i. \quad (4.10)$$

Par conséquent, les états de polarisation qui peuvent se propager à travers un système chiral 3D, sans être altérés, sont les polarisations circulaires droite et gauche.

### 4.2.3 Critères de chiralité 2D

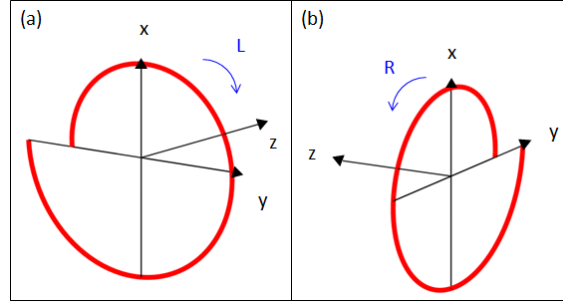


FIGURE 4.4 – (a) Illustration d'une spirale comme exemple d'objet chiral 2D. (b) Renversement de la direction d'observation.

Établissons maintenant les conditions requises par la chiralité optique 2D. Pour illustrer ces effets, prenons l'exemple d'une spirale orientée dans le sens horaire (Fig. 4.4(a)). Comme précédemment, nous inversons le chemin de la lumière (Fig. 4.4 (b)). Contrairement à l'hélice, le sens de rotation d'une spirale dépend de la direction d'observation. La spirale réciproque tourne à présent dans le sens anti-horaire. Le système vu est l'énantiomère  $J_{\Pi}$  (Eq. 4.1). L'existence de chiralité 2D est donc régie par la condition  $J_{Flip} = R_{\theta} \cdot J_{\Pi} \cdot R_{\theta}^{-1}$ , c'est à dire :

$$\Pi_0 \cdot J_R \cdot \Pi_0^{-1} = R_{\theta} \cdot (\Pi_x \cdot J \cdot \Pi_x^{-1}) \cdot R_{\theta}^{-1}. \quad (4.11)$$

Nous en déduisons les conditions de chiralité 2D :

$$J_{2D} = \begin{pmatrix} A & B \\ B & D \end{pmatrix} \quad \text{avec} \quad A \neq D \quad \text{et} \quad \Im\left(\frac{2B}{A-D}\right) \neq 0, \quad (4.12)$$

Ainsi, la chiralité 2D nécessite que le milieu soit décrit par une matrice de Jones symétrique. De plus, les conditions ci-dessus suggèrent que la chiralité optique 2D est intrinsèquement liée aux pertes dans le système.

#### Pertes et chiralité 2D

Pour mettre en évidence le lien entre la chiralité 2D et les pertes, il convient de rappeler que pour un milieu dissipatif la symétrie par inversion temporelle est brisée.

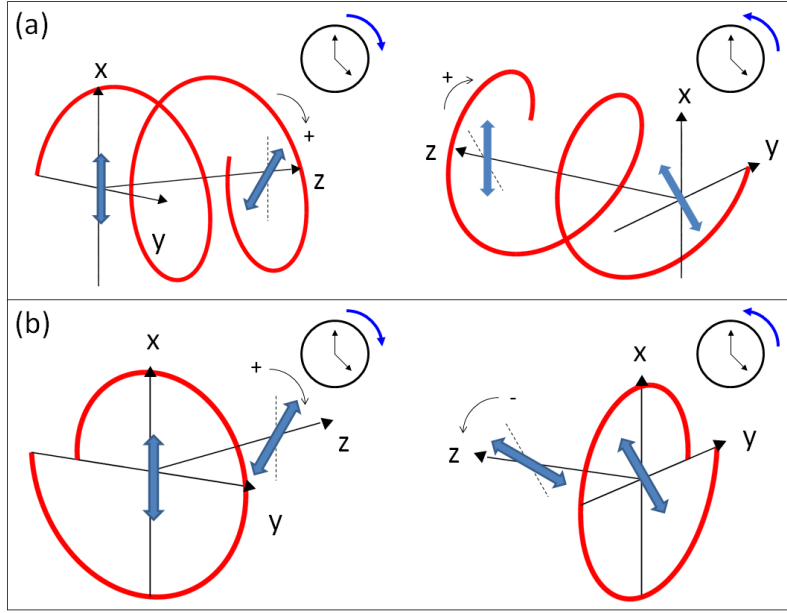


FIGURE 4.5 – Illustration de l'inversion temporelle appliquée à (a) un objet chirale 3D et (b) chirale 2D.

Comme détaillé dans [69], la matrice de Jones qui résulte d'une inversion temporelle est donnée par :

$$J^{-1,*} = \frac{1}{A^*D^* - B^*C^*} \begin{pmatrix} D^* & -B^* \\ -C^* & A^* \end{pmatrix}. \quad (4.13)$$

Un milieu isolé, sans perte doit être invariant par inversion temporelle, c'est à dire  $J^{-1,*} = J^T$ . Sa matrice de Jones doit être unitaire.

Cette propriété est respectée pour un système chirale 3D (illustration Fig. 4.5(a)). Lorsque le cours du temps est inversé, nous retrouvons l'état initial. Cette réversibilité s'explique notamment par le fait qu'une hélice conserve son sens quelque soit la direction de propagation de la lumière.

Au contraire, le sens d'une spirale s'inverse lorsque le chemin de la lumière est inversée (illustration Fig. 4.5(b)). Nous ne retrouvons pas l'état de départ. Pour le démontrer, considérons une matrice symétrique de la forme  $J = \begin{pmatrix} A & B \\ B & D \end{pmatrix}$ . Cette matrice est unitaire si elle vérifie :

$$J = \frac{1}{(AD - B^2)^*} \begin{pmatrix} D^* & -B^* \\ -B^* & A^* \end{pmatrix}, \quad \text{soit} \quad \Im\left(\frac{2B}{A - D}\right) = 0. \quad (4.14)$$

Cependant la condition Eq. 4.14 est en contradiction avec le critère de chiralité 2D donnée par l'Eq. 4.12. Par conséquent,  $J_{2D}$  ne peut pas être unitaire. Cela signifie que la symétrie temporelle est rompue. Cette irréversibilité temporelle est synonyme de dissipation et démontre que la chiralité 2D ne peut exister que dans des milieux dissipatifs. Les pertes sont donc nécessaires pour générer une chiralité optique 2D.

## Polarisations propres

La condition de chiralité 2D conduit également à la non-orthogonalité des vecteurs propres. Par commodité de calcul, nous posons  $B = |B|e^{i\phi_B}$  et  $\alpha = A - D = |\alpha|e^{i\phi_\alpha}$ . L'Eq. 4.12 se reformule comme suit :

$$\Im\left(\frac{2|B|e^{i\phi}}{|\alpha|}\right) \neq 0 \quad \text{soit} \quad \phi = \phi_B - \phi_\alpha \neq m\pi \quad (m \in \mathbb{Z}). \quad (4.15)$$

D'après l'équation aux valeurs propres  $J_{2D}\mathbf{E}_\pm = \lambda_\pm\mathbf{E}_\pm$  :

$$\mathbf{E}_\pm = \frac{1}{\sqrt{|B|^2 + |\lambda_\pm - A|^2}} \begin{pmatrix} B \\ \lambda_\pm - A \end{pmatrix}, \quad (4.16)$$

$$\lambda_\pm = \frac{1}{2} \left( (A + D) \pm \sqrt{(A - D)^2 + 4B^2} \right). \quad (4.17)$$

Supposons que les polarisations propres soient orthogonales :  $\mathbf{E}_-\cdot\mathbf{E}_+ = 0$ . Les deux conditions suivantes doivent remplir :

$$\Re(\mathbf{E}_-\cdot\mathbf{E}_+) = |B|^2 + |\alpha|^2 - |\alpha^2 + 4B^2| = 0 \quad \text{soit} \quad \phi = n\pi \quad (n \in \mathbb{Z}), \quad (4.18)$$

$$\Im(\mathbf{E}_-\cdot\mathbf{E}_+) = 2i\Im(\alpha^*\sqrt{\alpha^2 + 4B^2}) = 0. \quad (4.19)$$

Or, cette dernière condition est incompatible avec le critère imposé par l'Eq. 4.15. La contradiction entre la chiralité 2D et les états propres orthogonaux exige donc qu'un système optique dont les polarisations propres sont orthogonales ne peut pas générer des effets purement chiraux 2D.

Finalement, nous allons utiliser ces propriétés sur les matrices de Jones chirales pour caractériser les effets chiroptiques induits dans nos échantillons.

## 4.3 Réponse en polarisation d'une nano-ouverture rectangulaire

Pour comprendre la réponse en polarisation d'un réseau formé de  $\Lambda$ , revenons tout d'abord à l'unité de base : une nano-ouverture rectangulaire. Pour cela, nous fabriquons un échantillon de référence qui comprend  $5 \times 5$  nano-fentes gravées sur film d'épaisseur 200 nm (Fig. 4.6(a)). Chacune de ces fentes formeront les briques élémentaires des nanostructures  $\Lambda$  et  $T$ , que nous étudierons ultérieurement. Avant d'engager tout phénomène plasmonique, nous caractériserons l'état de polarisation directement transmis et diffracté par l'échantillon.

### 4.3.1 Ellipses de polarisation

Nous réalisons une tomographie en polarisation dans l'espace de Fourier de l'échantillon à l'aide du montage optique schématisé sur la Fig. 4.6(b). Un faisceau laser éclaire le réseau et pour chaque état de polarisation incident, nous mesurons l'intensité transmise sur chacune des bases de polarisations [43]. A partir des paramètres

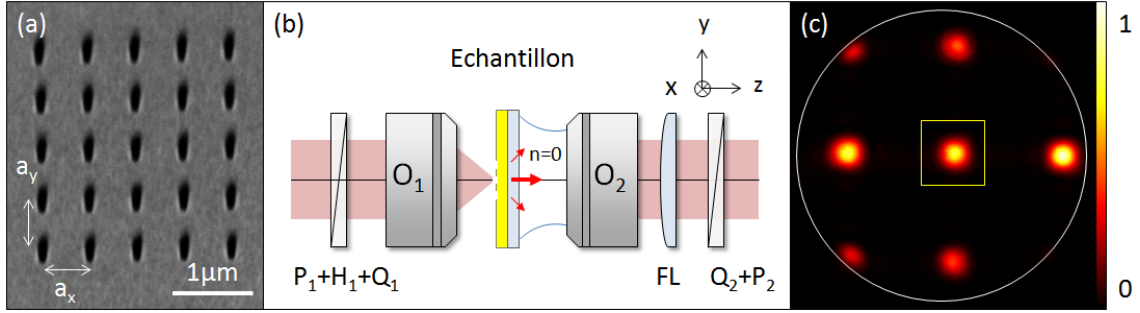


FIGURE 4.6 – (a) Image MEB de l'échantillon de référence : réseau de fentes de longueur  $L=200$  nm, largeur  $w=50$  nm séparées par une période spatiale  $a_x = a_y = \lambda_{SP}$ . (b) Schéma du montage optique : Tomographie en polarisation dans le plan de Fourier. (c) Image mesurée du plan de Fourier : le cercle blanc délimite l'ouverture numérique maximale de l'objectif de collection  $O_2$ . Le carré jaune indique l'ordre de diffraction 0 étudié. Echelle de couleur : Intensité (u.a.).

de Stokes, nous reconstruisons une cartographie spatiale des ellipses de polarisation. Cette représentation intuitive permet de visualiser, pixel par pixel, l'évolution du champ selon son amplitude et sa direction de propagation  $k_{x,y}$ . Les données présentées sur la Fig. 4.7 correspondent à l'ordre de diffraction 0 (encadré jaune sur la Fig. 4.6(c)). Nous constatons que ce réseau de référence agit principalement comme un polariseur linéaire dont l'axe est orienté selon  $\hat{x}$ . Quelque soit la polarisation incidente, linéaire ou circulaire, les états de polarisation transmis présentent une faible ellipticité et sont orientés perpendiculairement aux fentes. A l'exception de la Fig. 4.7(b) qui présente une polarisation selon  $\hat{y}$ . En effet, pour une lumière incidente polarisée  $\mathbf{Y}$ , nous obtenons une extinction presque totale. Cette polarisation verticale est donc attribuée à la transmission résiduelle du faisceau incident. Un examen minutieux des ellipses montre également que cet échantillon ne se comporte pas comme un polariseur linéaire parfait. Il génère une ellipticité non nulle et une légère rotation de la polarisation. Pour quantifier cet effet, analysons sa matrice de Jones.

### 4.3.2 Matrice de Jones chirales

Dans un premier temps, nous calculons la matrice de Mueller à partir des paramètres de Stokes :

$$M = \begin{pmatrix} 1.000 & 0.940 & -0.168 & -0.010 \\ 0.926 & 0.984 & -0.129 & -0.042 \\ 0.148 & 0.153 & -0.127 & 0.251 \\ -0.038 & -0.042 & -0.290 & -0.166 \end{pmatrix}. \quad (4.20)$$

La matrice de Jones peut se calculer à partir de la matrice de Mueller uniquement si le système n'est pas dépolarisant soit  $D(M) = \sqrt{\frac{\text{Tr}(M^T M) - m_{00}^2}{3m_{00}^2}} = 1$ . Nous mesurons une valeur  $D(M) = 0.99$ . Cela signifie que la lumière n'est pas dépolarisée



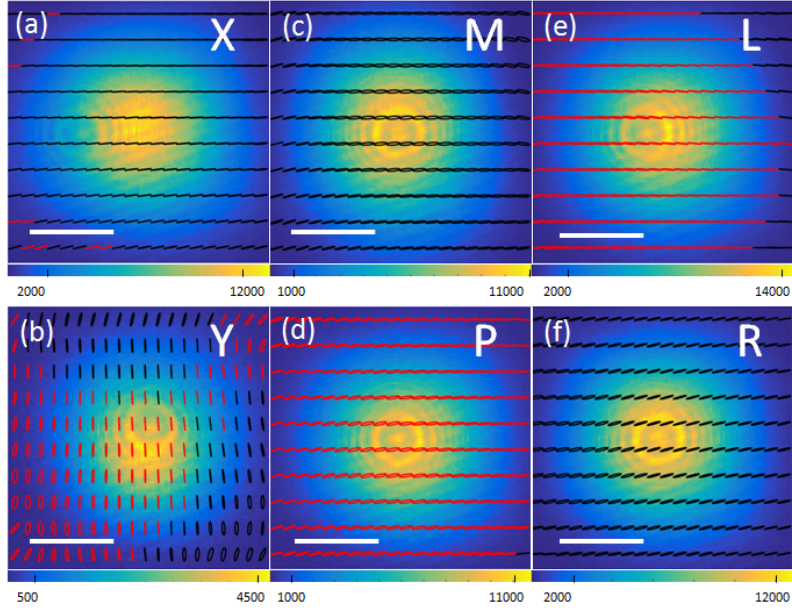


FIGURE 4.7 – Données expérimentales mesurées sur l'échantillon de référence (Fig. 4.6(a)) : Distribution d'intensité dans le plan de Fourier à l'ordre 0. L'état de polarisation incident est indiqué par X, Y, M, P, L et R. Code couleur des ellipses de polarisation : le rouge et le noir correspondent à une hélicité +1 et -1, respectivement. Barres d'échelle :  $k_0NA/8$ . Echelle de couleurs : Intensité (u.a.).

après une propagation à travers notre système optique. Nous en déduisons la matrice de Jones suivante :

$$J = \begin{pmatrix} 1.000 & -0.077 + 0.014i \\ 0.078 - 0.021i & -0.076 - 0.140i \end{pmatrix}. \quad (4.21)$$

Nous avons vu que les matrices de Jones chirales  $J_{3D}$  et  $J_{2D}$  se caractérisent respectivement par des matrices antisymétriques  $J_{AS}$  et symétriques  $J_S$ , avec :

$$J = J_{AS} + J_S \quad \text{avec} \quad J_{AS} = \frac{J - J^T}{2}, \quad (4.22)$$

$$J_S = \frac{J + J^T}{2}. \quad (4.23)$$

Par la suite, nous appliquerons de manière systématique cette décomposition pour estimer la réponse chirale de nos échantillons [70, 71]. Nous vérifierons si  $J_{AS}$  et  $J_S$  obéissent aux critères de chiralité 3D et 2D. Cela nous permettra de caractériser les brisures de symétrie au sein de nos échantillons.

Dans le cas de ce réseau de référence, nous trouvons une partie anti-symétrique égale à :

$$J_{AS} = \begin{pmatrix} 0 & -0.078 + 0.017i \\ -(-0.078 + 0.017i) & 0 \end{pmatrix}. \quad (4.24)$$

Nous constatons que cette matrice répond aux conditions imposées par la chiralité 3D. Bien que faibles, les termes anti-diagonaux confirment l'existence d'une activité

optique résiduelle dans notre le système ( $\gamma = -0.078 + 0.017i$ ). Celle-ci peut provenir d'erreurs expérimentales. Dans le plan de Fourier (Fig. 4.6(c)), nous observons notamment un désalignement par rapport à l'axe optique : on mesure 2 spots à gauche de l'image autour de  $k_y = \pm k_0 NA$  qui sont absents à droite. La présence du substrat de verre brise également la symétrie 3D du système. Enfin, cette chiralité 3D peut être aussi imputée à des défauts structuraux au sein de l'échantillon. Comme nous le montrerons ultérieurement, des nanostructures plasmoniques, d'apparence planaires, peuvent dissimuler des imperfections dans leur épaisseur. Celles-ci peuvent rompre la symétrie du système et altérer considérablement leur réponse en polarisation [68]. Bien que ces imperfections ne semblent affecter que faiblement la réponse d'une fente rectangulaire, nous montrerons que leur impact peut être significatif sur les nano-ouvertures  $\Lambda$ .

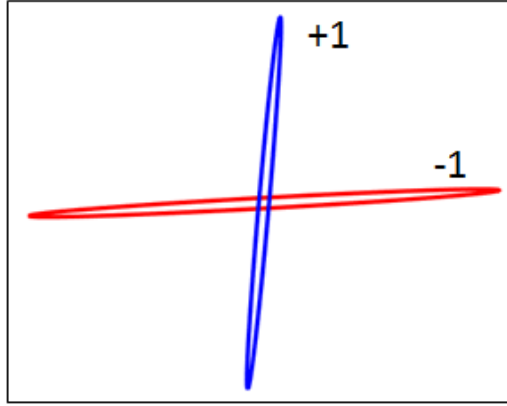


FIGURE 4.8 – Polarisationes propres mesurées sur le réseau de fentes.

Analysons maintenant la composante symétrique de la matrice de Jones :

$$J_S = \begin{pmatrix} 1.000 & 0.001 - 0.004i \\ 0.001 - 0.004i & -0.076 - 0.140i \end{pmatrix} \approx \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \beta \end{pmatrix}. \quad (4.25)$$

Compte tenu de la géométrie rectangulaire de l'interstice, nous nous attendons à une chiralité planaire négligeable. Nous calculons effectivement une valeur faible du critère de chiralité 2D :  $\Im(2B/(A - D)) = -0.003$ . La symétrie planaire des fentes est notamment confirmée par des vecteurs propres presque orthogonaux (Fig. 4.8).

Toutefois,  $J_S$  diffère de la matrice  $J_X = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$  d'un polariseur linéaire parfait par un paramètre  $\beta = -0.076 - 0.140i$  non nul.

### 4.3.3 Contribution du dipôle $\mathbf{p}^{\parallel}$

Ce facteur de forme  $\beta$  décrit la contribution dipolaire induite par le petit axe. Lors d'une étude précédente [38, 39], nous avons mesuré par imagerie LRM [40, 42] la contribution respective de chaque dipôle  $\mathbf{p}^{\perp}$  et  $\mathbf{p}^{\parallel}$  dans la génération des plasmons de surface. Nous avons vu que ce facteur est déterminant dans l'efficacité de conversion

d'un spin incident en un faisceau plasmonique directionnel. Cependant, cette méthode ne permet qu'une estimation partielle de  $\beta$ , à savoir sa partie réelle  $\Re(\beta)$ . Au contraire, la tomographie en polarisation mise en œuvre ici permet mesurer complètement  $\beta$ , c'est à dire sa partie réelle et imaginaire. Cette quantité sera notamment injectée dans nos simulations théoriques afin de prendre en considération ce facteur de forme dans les structures  $\Lambda$  et  $T$ .

**Bilan** Dans cette première partie, nous avons mesuré la réponse en polarisation d'un réseau de fentes pour lequel nous avons détecté une brisure de symétrie 3D résiduelle et une chiralité 2D négligeable. Nous avons également caractérisé l'influence géométrique des nano-ouvertures au moyen du facteur de forme  $\beta$ .

## 4.4 Modèle théorique dipolaire d'un $\Lambda$ idéal

Après avoir identifié la réponse d'une ouverture rectangulaire, déterminons à présent la matrice de Jones théorique correspondant à une cellule  $\Lambda$ .

### 4.4.1 Modélisation

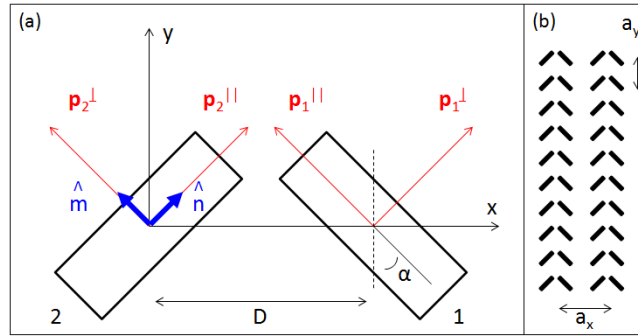


FIGURE 4.9 – (a) Schéma d'une structure  $\Lambda$ . (b) Réseau de structures  $\Lambda$ .

Nous modélisons une nano-ouverture  $\Lambda$  par deux fentes rectangulaires 1 et 2 perpendiculaires ( $\alpha = 45^\circ$ ), séparés par une distance  $D$  (voir Fig. 4.9). Cette approche multidipolaire est similaire à celle introduite dans [38] pour décrire le couplage spin-orbite, à cela près qu'ici, elle est appliquée au champ directement transmis et à non la directionnalité plasmonique. Lorsque les deux fentes sont parfaitement identiques, symétriques par rapport à l'axe  $Oy$ , un champ incident ne devrait théoriquement subir aucun effet chiral. Considérons un faisceau  $\mathbf{E}^{in}$  excitant une structure  $\Lambda$  en incidence normale (selon  $Oz$ ). Les moments dipolaires induits par chacune de ces fentes  $\mathbf{p}_i = \mathbf{p}_i^\perp + \mathbf{p}_i^\parallel$  ( $i=1, 2$ ) s'écrivent :

$$\mathbf{p}_1 = \alpha_1(\hat{n} \cdot \mathbf{E}^{in})\hat{n} + \beta_1(\hat{m} \cdot \mathbf{E}^{in})\hat{m}, \quad (4.26)$$

$$\mathbf{p}_2 = \alpha_2(\hat{m} \cdot \mathbf{E}^{in})\hat{m} + \beta_2(\hat{n} \cdot \mathbf{E}^{in})\hat{n}, \quad (4.27)$$

où  $\hat{n} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix}$  et  $\hat{m} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \end{pmatrix}$  sont les normales respectives aux grands et petits axes. Dans le plan de Fourier, le champ transmis par chaque fente est donné par :

$$\mathbf{E}_i^{out}(\mathbf{k}_{\parallel}) \propto \mathbf{p}_i e^{-i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \mathbf{r}_i}, \quad (4.28)$$

où  $\mathbf{k}_{\parallel} = k_x \hat{x} + k_y \hat{y}$  et  $\mathbf{r}_i$  le vecteur position des fentes. A chaque dipôle  $i$ , est associée une matrice de Jones  $J_i$  définie par :  $\mathbf{E}_i^{out}(\mathbf{k}_{\parallel}) = J_i \cdot \mathbf{E}^{in}(\mathbf{k}_{\parallel})$ . A l'ordre 0 ( $\mathbf{k}_{\parallel} = 0$ ), nous en déduisons :

$$J_1 = \begin{pmatrix} \alpha_1 + \beta_1 & -\alpha_1 + \beta_1 \\ -\alpha_1 + \beta_1 & \alpha_1 + \beta_1 \end{pmatrix}, \quad J_2 = \begin{pmatrix} \alpha_2 + \beta_2 & \alpha_2 - \beta_2 \\ \alpha_2 - \beta_2 & \alpha_2 + \beta_2 \end{pmatrix} \quad (\alpha, \beta \in \mathbb{C}) \quad (4.29)$$

avec  $\alpha_i$  et  $\beta_i$  les contributions relatives entre les dipôles  $\mathbf{p}_i^{\perp}$  et  $\mathbf{p}_i^{\parallel}$ . Pour une cellule  $\Lambda$  parfaitement symétrique, nous avons  $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha$  et  $\beta_1 = \beta_2 = \beta$ . La matrice de Jones totale d'une ouverture  $\Lambda$  idéale s'écrit alors :

$$J = (1 + \beta) \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad (4.30)$$

où nous avons posé  $\alpha = 1$  par commodité de calcul. L'état de polarisation doit donc se conserver à travers le système.

#### 4.4.2 Simulations

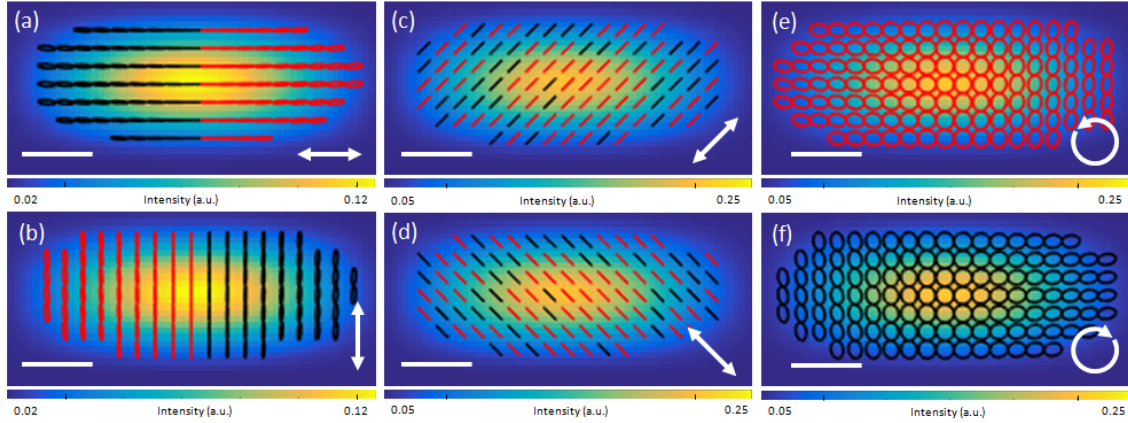


FIGURE 4.10 – Simulations : distribution d'intensité dans le plan de Fourier à l'ordre 0 de diffraction. Le système étudié est un réseau de  $\Lambda$  parfaitement symétrique de facteur de forme  $\beta = -0.076 - 0.140i$ . Les flèches blanches indiquent l'état de la polarisation incidente. Code couleur des ellipses de polarisation : le rouge et le noir correspondent une hélicité  $+1$  and  $-1$ , respectivement. Barres d'échelle :  $k_0 NA/16$ . Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

Nous vérifions ce comportement sur nos simulations (Fig. 4.10). Les données sont calculées pour un réseau de  $2 \times 10 \Lambda$  idéaux, symétriques et planaires (Fig. 4.9(b)). J'ai effectué cette simulation en utilisant une description du champ en ondes TE et

TM qui a été développé par A. Drezet [38]. Celle-ci tient compte des effets de diffraction et d'imagerie [72]. Afin de prédire le comportement théorique des échantillons, j'y ai intégré le facteur de forme  $\beta$  mesuré précédemment pour le réseau de référence.

En accord avec l'Eq. 4.30, l'état de polarisation transmis est conservé autour de  $\mathbf{k}_{\parallel} = 0$ . Toutefois, à mesure qu'on s'éloigne de l'ordre 0, on constate une transformation de la polarisation. Les états linéaires sont convertis en polarisation elliptique à  $|\mathbf{k}_{\parallel}|$  croissant (Fig. 4.10(a-b)). Nous détectons également une modification du degré de polarisation circulaire (Fig. 4.10 (e,f)). Cette transformation est attribuée à la différence de phase due à l'espacement  $D$  entre les dipôles 1 et 2. En effet, lorsque  $|\mathbf{k}_{\parallel}| \neq 0$ , cette différence de phase peut conduire jusqu'à une conversion en polarisation circulaire si  $k_x \cdot D/2 = \pi/4$ . Par exemple, pour une onde incidente polarisée  $\mathbf{E}^{in} = E_0 \hat{x}$ , le champ diffracté dans la direction de propagation  $k_x$  s'écrit :

$$\mathbf{E}^{out}(k_x) \propto (1 + \beta) \cos\left(\frac{k_x D}{2}\right) \hat{x} + i(1 - \beta) \sin\left(\frac{k_x D}{2}\right) \hat{y}, \quad (4.31)$$

d'où la polarisation elliptique détectée dans la Fig. 4.10(a).

## 4.5 Chiralité mixte 2D et 3D

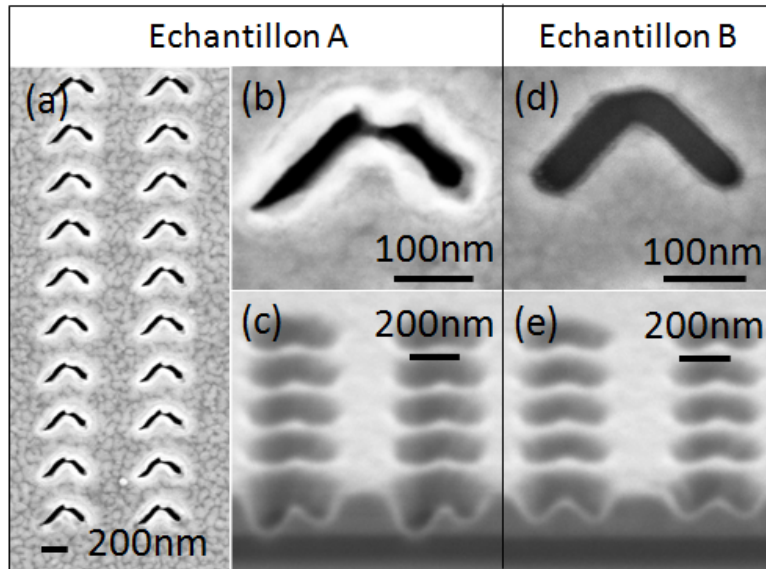


FIGURE 4.11 – Images MEB : (a) échantillon A, (b) agrandissement sur une nanostructure  $\Lambda$ , (c) vue latérale sur une coupe. Échantillon B : (d) agrandissement sur une nanostructure  $\Lambda$ , (e) vue latérale sur une coupe.

Nous avons déterminé la réponse théorique d'un réseau de  $\Lambda$ . Passons à la caractérisation expérimentale des échantillons. Nous verrons que leur comportement diffère grandement des prédictions théoriques. Les deux échantillons A et B, examinés au cours de cette étude, sont présentés sur la Fig. 4.11(b) et (d).

## 4.5.1 Défauts structuraux planaires et volumiques

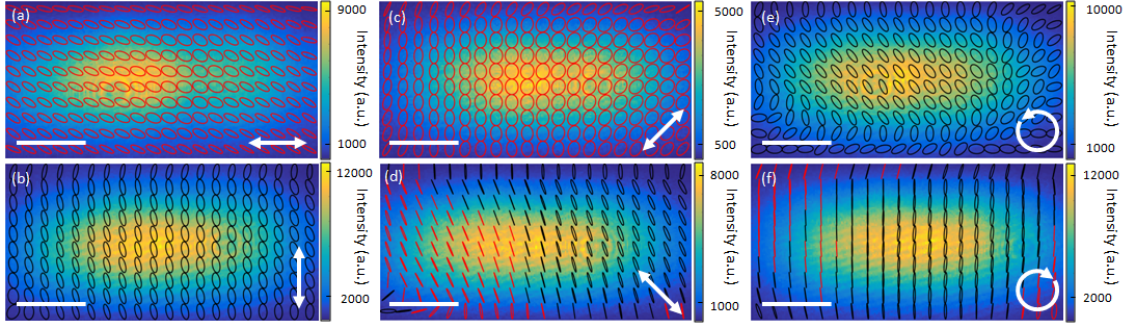


FIGURE 4.12 – Données expérimentales mesurées sur l'échantillon A : distribution d'intensité dans le plan de Fourier à l'ordre 0. Les flèches blanches indiquent l'état de la polarisation incidente. Code couleur des ellipses de polarisation : le rouge et le noir correspondent à une hélicité +1 and -1, respectivement. Barres d'échelle :  $k_0NA/16$ . Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

Commençons par l'examen de l'échantillon A (Fig. 4.11(a)). Nous constatons sur les images MEB que les deux bras du  $\Lambda$  diffèrent de manière significative (Fig. 4.11(b)). Nous verrons que cette forte asymétrie planaire va se manifester par une chiralité 2D marquée. En outre, nous révélerons que cette chiralité sera accompagnée d'une chiralité 3D, due à des défauts dans l'épaisseur de l'échantillon (Fig. 4.11(c)).

**Ellipses de polarisation** Comme précédemment, nous réalisons une tomographie en polarisation et reconstruisons une cartographie du champ transmis à l'ordre 0 (Fig. 4.12). Nous remarquons une grande disparité entre la réponse mesurée et celle attendue pour un réseau de  $\Lambda$  idéaux (Fig. 4.10). L'état de polarisation est considérablement transformé, avec un dichroïsme optique frappant. Nous observons notamment une conversion des états linéaires incidents en polarisation elliptique (Fig. 4.12(a)-(c)). Nous mesurons aussi une forte composante linéaire pour un champ incident polarisé circulairement (Fig. 4.12(f)).

**Matrices de Jones chirales** Pour identifier l'origine de ces effets et effectuer une comparaison quantitative avec nos prédictions théoriques, nous analysons la symétrie de la matrice de Jones expérimentale :

$$J = \begin{pmatrix} 1 & -0.387 - 1.348i \\ -0.368 + 0.557i & -0.008 + 2.393i \end{pmatrix}, \quad (4.32)$$

qui, décomposée sous sa forme symétrique et antisymétrique, s'écrit :

$$J_S = \begin{pmatrix} 1 & -0.378 - 0.395i \\ -0.378 - 0.395i & -0.008 + 2.393i \end{pmatrix}, \quad (4.33)$$

$$J_{AS} = \begin{pmatrix} 0 & -(0.009 + 0.953i) \\ 0.009 + 0.953i & 0 \end{pmatrix}. \quad (4.34)$$

D'une part, nous vérifions que  $J_S$  remplit les conditions imposées par la chiralité optique planaire (Eq. 4.12) avec  $\Im(2B/(A - D)) = -0.193$ . Cela suggère que nous avons une brisure de symétrie dans le plan de notre échantillon. Cette asymétrie est clairement visible sur l'image MEB (Fig. 4.11(b)) où les deux bras du  $\Lambda$  diffèrent dans leur forme avec une longueur et une largeur distinctes.

D'autre part, nous trouvons que  $J_{AS}$  répond également aux critères requis par la chiralité 3D avec un facteur gyromagnétique  $\gamma = 0.953$ . Cette signature de l'activité optique est représentative d'une brisure de symétrie dans le volume de l'échantillon. Pour valider cette hypothèse, nous avons réalisé une coupe transversale par FIB d'un échantillon fabriqué dans les mêmes conditions. L'image MEB (Fig. 4.11(c)) confirme cette rupture de symétrie 3D : nous observons clairement une différence de hauteur entre les deux bras des  $\Lambda$ . Ceci indique qu'ils n'ont pas été gravés avec la même profondeur. Par conséquent, ces défauts fabrication planaires et volumiques confère au système une chiralité mixte 2D et 3D, responsable de la transformation de la polarisation mesurée.

**Polarisations propres** En résolvant l'équation aux valeurs propres de la matrice expérimentale (Eq. 4.32), nous avons représenté sur la Fig 4.13, les états propres d'un système à chiralité mixte. Ils décrivent deux ellipses contra-rotatives. Nous rappelons que dans le cas d'un milieu purement chiral 3D, les états propres sont donnés par les polarisations circulaires gauche et droite. Nous retrouvons donc des états d'hélicité opposée. En revanche, ces états ne sont pas circulaires mais elliptiques avec des ellipticités différentes. Ce qui confirme que nous ne sommes pas en présence d'une chiralité 3D pure mais d'une chiralité mixte 3D et 2D.

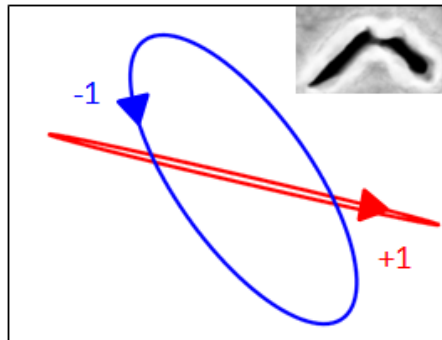


FIGURE 4.13 – Polarisation propres mesurées pour l'échantillon A.  $\pm 1$  correspond à l'hélicité.

**Bilan** Nous avons mis en évidence un mélange de chiralité optique 2D et 3D au sein d'un même système. Ce comportement résulte de défauts structuraux planaires et volumiques qui brisent la symétrie des  $\Lambda$ . En évaluant la qualité des nano-structures gravées, notre méthode nous a permis d'améliorer le processus de fabrication. Nous avons aussi montré comment les polarisations propres se transforment dans le cas d'un milieu où coexistent chiralité planaire et volumique.

## 4.5.2 Réduction des défauts d'asymétrie

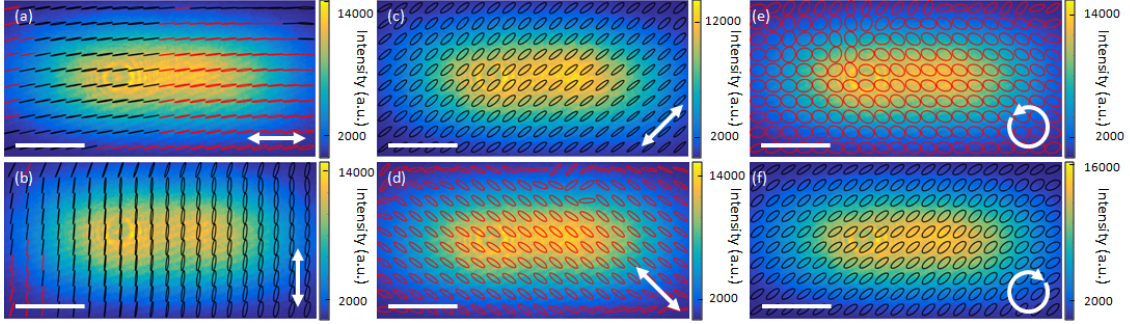


FIGURE 4.14 – Données expérimentales mesurées sur l'échantillon B : distribution d'intensité dans le plan de Fourier à l'ordre 0. Les flèches blanches indiquent l'état de la polarisation incidente. Code couleur des ellipses de polarisation : le rouge et le noir correspondent à une hélicité  $+1$  and  $-1$ , respectivement. Barres d'échelle :  $k_0 NA/16$ . Échelles de couleur : Intensité (u.a.).

Sur la Fig. 4.11(d), nous présentons l'image MEB d'une nanostructure composée de  $\Lambda$  dont les réglages de fabrication ont été optimisés afin réduire au maximum les défauts d'asymétrie. Ces réglages concernent notamment le nombre de passages du faisceau d'ions durant la gravure. Ce nouvel échantillon présente effectivement des bras plus symétriques, avec entre les deux bras du  $\Lambda$  une géométrie et des dimensions comparables.

**Ellipses de polarisation** Un premier examen qualitatif des cartes de polarisation (Fig. 4.14) montre une meilleure conservation de l'état de polarisation incident, ce qui est en accord avec la réponse théorique d'un  $\Lambda$  idéalement symétrique. Toutefois, nous détectons une légère altération de la polarisation. Les champs ne sont pas parfaitement linéaires ou circulaires. Par exemple, nous détectons une transformation des états linéaires  $\mathbf{P}$  et  $\mathbf{M}$  (Fig. 4.14(c),(d)) en polarisation elliptique.

**Matrice de Jones chirales** Ce comportement est quantitativement évalué par l'analyse des matrices de Jones anti-symétrique et symétrique :

$$J = \begin{pmatrix} 1 & 0.150 + 0.019i \\ 0.144 - 0.013i & 0.949 + 0.594i \end{pmatrix}, \quad (4.35)$$

avec :

$$J_{AS} = \begin{pmatrix} 0 & 0.003 + 0.016i \\ -(0.003 + 0.016i) & 0 \end{pmatrix}, \quad (4.36)$$

$$J_S = \begin{pmatrix} 1.000 & 0.147 + 0.003i \\ 0.147 + 0.003i & 0.949 + 0.594i \end{pmatrix}. \quad (4.37)$$

En comparant  $J_{AS}$  à  $J_{3D}$ , nous trouvons que le pouvoir rotatoire de la polarisation dans l'échantillon B est négligeable ( $|\gamma| \ll 1$ ). Ceci est corroboré par la Fig. 4.14,



où l'orientation des états linéaires est globalement conservée. Une coupe transversale montre notamment que nous avons un meilleur contrôle de la profondeur de gravure : les branches du  $\Lambda$  sont maintenant de même hauteur (Fig. 4.11(e)). Des études préliminaires ont montré que la stabilité de l'instrument FIB et le nombre de boucles de passage du faisceau d'ions étaient déterminant dans la symétrie des  $\Lambda$  fabriqués. Alors que l'échantillon A a été réalisé en utilisant 12 boucles, nous avons trouvé qu'en diminuant le nombre de passage à 6, nous pouvions réduire cette asymétrie volumique.

Par ailleurs, malgré une apparente symétrie planaire, la matrice  $J_S$  expérimentale remplit toutefois les critères de chiralité 2D avec  $\Im(2B/(A - D)) = 0.246$ . Cette asymétrie planaire est confirmée par une différence de largeur mesurée entre chaque bras de 11% en moyenne (et 0.8% en longueur). Cet échantillon B présente donc une réponse dominée par la chiralité 2D avec une faible signature chirale 3D, comportement que nous retrouvons lors de l'analyse des états propres correspondant.

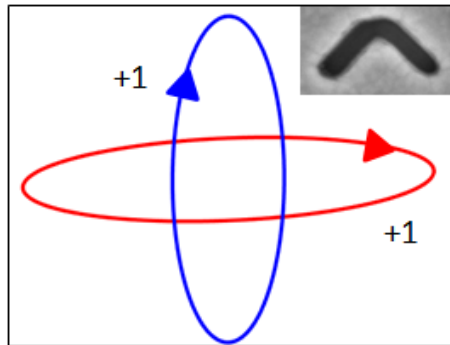


FIGURE 4.15 – Polarisation propre mesurée pour l'échantillon B.  $\pm 1$  correspond à l'hélicité .

**Polarisations propres** Les vecteurs propres sont décrits par deux ellipses ayant le même sens de rotation  $+1$  (Fig. 4.15). Nous rappelons qu'une chiralité 2D pure implique la non-orthogonalité des polarisations propres. Dans le cas général, elles sont décrites par des états elliptiques co-rotatifs, d'orientations et d'ellipticité distinctes [62], [18]. Ces états non circulaires et de même hélicité traduisent donc d'une faible chiralité 3D dans cet échantillon B.

Finalement, l'analyse des matrices de Jones chirales nous a permis de révéler, de manière non-destructive, des défauts de fabrication et par la suite d'améliorer la qualité de nos échantillons. En dépit des progrès techniques de gravure FIB, cette étude montre que des imperfections structurelles, telles que des distorsions géométriques et des brisures de symétrie, peuvent conduire à des réponses chirales significatives [68, 73]. Bien que l'origine de ces défauts structuraux ne soit pas complètement identifiée, des recherches sont en cours pour clarifier l'influence du nombre de boucles lors la gravure FIB sur ces imperfections.

## 4.6 Description de la chiralité mixte par le modèle microscopique de Kuhn

Dans le but d'obtenir une interprétation microscopique des effets de cette chiralité mixte, nous utilisons le modèle de Kuhn [74]. Nous y intégrons la chiralité 2D en décrivant notre système comme deux oscillateurs couplés différents.

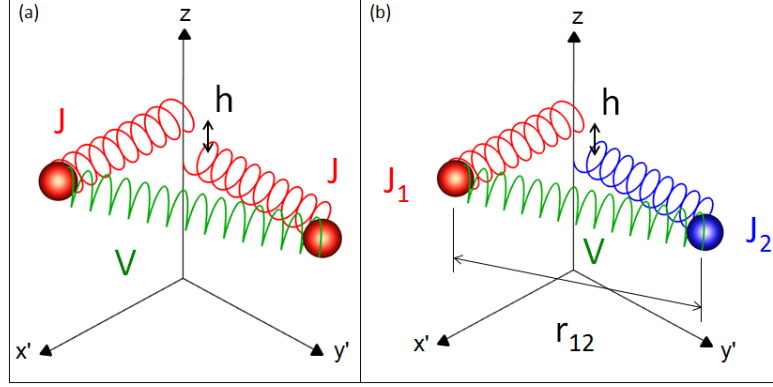


FIGURE 4.16 – (a) Système purement chiral 3D décrit par le modèle de Kuhn (b) Modèle de Kuhn généralisé modélisant un système mélangeant chiralité 2D et 3D.

Le modèle de Kuhn a été initialement développé pour expliquer les phénomènes d'activité optique observés dans des milieux moléculaires chiraux. La réponse d'une molécule chirale est modélisée à l'aide de deux oscillateurs harmoniques couplés. Ces oscillateurs sont identiques, orthogonaux et séparés verticalement d'une distance  $h$  le long de l'axe optique  $z$  (Fig. 4.16(a)). Sous l'effet d'un champ incident, ce système est mis en vibration. En résolvant l'équation du mouvement, ce modèle permet de comprendre intuitivement l'activité optique dans les systèmes moléculaires chiraux. Dans sa version originale, les dipôles sont identiques et sont décrits par une même matrice de Jones  $J$ . La chiralité planaire n'y est pas prise en considération.

Pour généraliser ce modèle à des milieux complexes où coexistent les deux types de chiralité 2D et 3D, nous traitons notre système comme deux oscillateurs distincts 1 et 2, décrits par des matrices de Jones différentes  $J_1$  et  $J_2$ . Dans notre expérience, chaque oscillateur va simuler le comportement associé à l'un des deux bras de la structure  $\Lambda$  (Fig. 4.16(b)). Sous l'action du champ incident  $\mathbf{E}^{in}$ , le système est mis en mouvement. Le couplage entre les deux oscillateurs est décrit par une matrice de couplage notée  $V$ . Les équations du mouvement s'écrivent comme suit :

$$\tilde{\mathbf{p}}_1 = J_1 \mathbf{E}^{in} + J_1 V e^{ik_z h} \tilde{\mathbf{p}}_2, \quad (4.38)$$

$$\tilde{\mathbf{p}}_2 = J_2 \mathbf{E}^{in} + J_2 V e^{-ik_z h} \tilde{\mathbf{p}}_1, \quad (4.39)$$

avec  $\tilde{\mathbf{p}}_1 = \mathbf{p}_1 e^{ik_z h/2}$  et  $\tilde{\mathbf{p}}_2 = \mathbf{p}_2 e^{-ik_z h/2}$ . Exprimées sous forme de matrices de blocs, celles-ci se réécrivent telles que :

$$\begin{pmatrix} I & -J_1 V e^{ik_z h} \\ -J_2 V^T e^{-ik_z h} & I \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{\mathbf{p}}_1 \\ \tilde{\mathbf{p}}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} J_1 \mathbf{E}^{in} \\ J_2 \mathbf{E}^{in} \end{pmatrix}, \quad (4.40)$$

où  $I$  est la matrice d'identité,  $k_z = \sqrt{\frac{\omega^2}{c^2}\varepsilon - k_x^2 - k_y^2} \approx \frac{\omega}{c}\sqrt{\varepsilon}$  et  $\varepsilon$  la fonction diélectrique du milieu. En résolvant l'équation  $\widetilde{\mathbf{p}}_1 + \widetilde{\mathbf{p}}_2 = \mathbf{J}\mathbf{E}^{in}$ , nous en déduisons l'expression générale de la matrice de Jones connectée à la chiralité mixte 2D et 3D :

$$J = (I - J_1 V J_2 V^T)^{-1} J_1 + J_1 V (I - J_2 V^T J_1 V)^{-1} J_2 + J_2 V^T (I - J_1 V J_2 V^T)^{-1} J_1 + (I - J_2 V^T J_1 V)^{-1} J_2. \quad (4.41)$$

**Milieux isotropes** Afin d'extraire une interprétation physique de l'Eq. 4.41, considérons le cas particulier des milieux isotropes. La matrice d'interaction peut se calculer à partir du champ rayonné par le dipôle 1 sur le dipôle 2 comme suit :

$$\mathbf{E}_{1 \rightarrow 2} = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0 r_{12}^3} (\mathbf{p}_1 - 3\frac{(\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^2} \mathbf{r}_{12}), \quad (4.42)$$

où  $\mathbf{r}_{12}$  est la distance entre les centres de masse des dipôles 1 et 2. La matrice d'interaction vérifie alors  $V = V^T$  et elle est donnée par :

$$V = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0 r_{12}^3} (I - \frac{3}{r_{12}^2} \begin{pmatrix} x_{12}x_{12} & x_{12}y_{12} \\ x_{12}y_{12} & y_{12}y_{12} \end{pmatrix}) = \begin{pmatrix} V_{11} & V_{12} \\ V_{12} & V_{22} \end{pmatrix}. \quad (4.43)$$

Ce couplage mutuel modélise une interaction réciproque entre les dipôles 1 et 2. L'action du dipôle 1  $\rightarrow$  2 est identique à celle du dipôle 2  $\rightarrow$  1. Pour dégager une interprétation intuitive de la matrice  $J$  (Eq. 4.41), nous considérons également des fentes infiniment minces, c'est à dire que nous négligeons la contribution de l'axe mineur soit  $\beta_1 = \beta_2 = 0$ . Dans le système de coordonnées  $(O, x', y')$  (Fig. 4.16(b)), nous avons :

$$J_1 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}; \quad J_2 = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \alpha \end{pmatrix}; \quad V = \begin{pmatrix} 0 & V_{12} \\ V_{12} & 0 \end{pmatrix}, \quad (4.44)$$

où nous avons posé  $\alpha_1 = 1$ ,  $\alpha_2 = \alpha$ , par commodité de calcul. Finalement, nous en déduisons les parties antisymétrique et symétrique de la matrice de Jones :

$$J_{AS} = \begin{pmatrix} 0 & i\alpha V_{12} \sin(k_z h) \\ -i\alpha V_{12} \sin(k_z h) & 0 \end{pmatrix}, \quad (4.45)$$

$$J_S = \begin{pmatrix} 1 & \alpha V_{12} \cos(k_z h) \\ \alpha V_{12} \cos(k_z h) & \alpha \end{pmatrix}. \quad (4.46)$$

D'une part,  $J_{AS}$  est caractérisée par une puissance gyrotropique  $\alpha V_{12} \sin(k_z h)$ . Si la distance de séparation  $h$  entre les oscillateurs est nulle, nous n'observons pas d'activité optique. Notre description est donc en accord avec le modèle classique de Kuhn. L'activité optique requiert une brisure de symétrie 3D dans le système ce qui

se traduit par une distance  $h$  non nulle.

D'autre part,  $J_S$  est liée à la chiralité planaire si elle obéit aux critères suivants :

$$\text{Condition 1 : } \alpha \neq 1, \quad (4.47)$$

$$\text{Condition 2 : } \Im\left(\frac{2\alpha V_{12} \cos(k_z h)}{1 - \alpha}\right) \neq 0, \quad (4.48)$$

La conditions 1 caractérise l'asymétrie planaire du système. Elle signifie que les fentes doivent être par exemple de longueur et/ou de largeur différentes. La condition 2 souligne le lien inhérent qu'il existe entre les pertes du milieu et la chiralité planaire [75, 18, 76, 77, 78]. Cette condition est vérifiée si les termes  $\alpha$ ,  $V_{12}$ , ou  $k_z$  sont complexes avec des parties imaginaires non nulles. Dans les structures plasmoniques, la dissipation et plus spécifiquement l'excitation des plasmons de surface sont notamment déterminantes pour la génération de la chiralité 2D. Par exemple, Drezet et al. [18] ont rapporté le rôle essentiel des plasmons de surface dans la réponse chirale 2D de spirales plasmoniques. Notre modèle intègre donc le rôle fondamental des pertes pour la génération de la chiralité 2D. Grâce à cette description étendue du modèle de Kuhn, nous pouvons donner une interprétation physique à la matrice de Jones et ainsi comprendre intuitivement les origines de la chiralité 2D et 3D. Alors que le modèle de Kuhn original est principalement utilisé en chimie pour décrire la réponse optique des molécules chirales (chiralité 3D), notre adaptation du modèle de Kuhn a également la faculté de rendre compte de la chiralité 2D (pour  $h = 0$ ). Il est donc particulièrement pertinent pour l'étude des plasmons de surface.

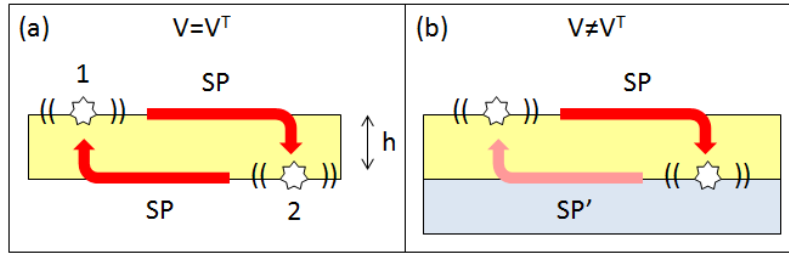


FIGURE 4.17 – (a) Couplage dipolaire symétrique. (b) Couplage dipolaire asymétrique.

**Cas général** Précisons que la matrice de Jones obtenue à l'Eq. 4.41 s'applique également au cas plus général des milieux non-isotropes. Elle permet de décrire des milieux isotropes ( $V = V^T$ ) mais également des interactions dipôle-dipôle non-symétriques ( $V \neq V^T$ ). Prenons par exemple le cas des interactions dipolaires via des canaux plasmoniques. Sur la Fig. 4.17(a), un dipôle 1 situé près d'une interface air-métal produit des plasmons qui vont exciter un deuxième dipôle 2. Ce dernier est situé à une distance  $h$  sous le dipôle 1. Il devient alors clair que la symétrie de couplage peut être rompue par la présence d'un substrat. Comme illustré sur la Fig. 4.17(b), si le dipôle 2 est positionné au niveau du substrat, le dipôle 1 sera

excité par des plasmons créés à l'interface métal-substrat. L'action de  $1 \rightarrow 2$  sera donc différent de  $2 \rightarrow 1$  d'où  $V \neq V^T$ .

Bien que notre approche permet de capturer la physique sous-jacente de la chiralité optique, il convient d'en mentionner les limitations. En particulier, notre modèle n'inclut pas la contribution des plasmons et des interactions inter-dipolaires dans la réponse du champ transmis. Or, des études [79, 80] ont montré le rôle fondamental des plasmons localisés, des modes guidés et évanescents dans la transmission et la polarisation de la lumière à travers les réseaux métalliques. Notre modèle mériterait donc d'être affiné pour tenir compte de ces effets. De plus, pour déterminer les propriétés spectrales de la chiralité 2D et 3D, notre approche pourrait être combinée à une polarimétrie spectroscopique [81].

## 4.7 Conclusion

Nous avons proposé une méthode expérimentale pour mettre en évidence des effets chiraux 2D et 3D dans des réseaux plasmoniques. L'analyse des matrices de Jones chirales a révélé une chiralité mixte causée par des défauts structuraux 2D et 3D. En généralisant le modèle de Kuhn aux milieux chiraux 2D et 3D, nous donnons une vision microscopique et intuitive des matrices de Jones chirales. Avec la complexité et l'intérêt croissant pour les structures plasmoniques chirales [82, 83], la méthode proposée pourrait donc être bénéfique pour l'élaboration de nouveaux systèmes chiraux exploitant à la fois la chiralité 2D et 3D optiques pour manipuler les propriétés de la lumière [63].

Finalement, l'identification de ces défauts nous a permis d'améliorer la qualité des métasurfaces fabriquées. Dans le chapitre suivant, nous allons démontrer la conversion des plasmons de surface en ondes propagatives, polarisées circulairement, dont le mécanisme repose sur le processus de SHEL réciproque.

# Chapitre 5

## Plateforme plasmonique de brouillage d'interférence

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>91</b>
<b>5.2</b>	<b>Mécanisme de SHEL réciproque : Démonstration d'un polariseur circulaire plasmonique</b>	<b>93</b>
5.2.1	Protocole expérimental	93
5.2.2	Résultats : Découplage en polarisation circulaire	95
<b>5.3</b>	<b>Dispositif plasmonique de brouillage d'interférence</b>	<b>98</b>
5.3.1	Discernabilité des plasmons	99
5.3.2	Plasmons indiscernables	100
5.3.3	Expérience classique de la "gomme quantique"	100
<b>5.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>101</b>

---

### 5.1 Introduction

La nanophotonique joue un rôle clé dans le développement des technologies de l'information quantique. Elle vise à comprendre les propriétés quantiques de la lumière et à maîtriser ses interactions avec la matière. Par ailleurs, le déploiement à grande échelle de ces systèmes encouragent de plus en plus la miniaturisation des composants optiques. Les efforts pour manipuler les propriétés quantiques des photons à l'échelle sublongueur d'onde ont alors motivé l'émergence de la plasmonique quantique. Cette dernière a pour objectif d'explorer les propriétés quantiques fondamentales des plasmons [87, 88] et ainsi tirer profit des interactions exaltées entre les émetteurs quantiques et les systèmes plasmoniques. Or les collisions entre les électrons et les pertes intrinsèques liées aux plasmons pourraient engendrer une réduction de la cohérence. Pour valider l'usage des plasmons de surface comme vecteur de l'information quantique, plusieurs travaux ont été menés pour montrer leur nature bosonique et ont reproduit les expériences fondamentales d'optique quantique avec des plasmons. La préservation des propriétés d'intrication et de dualité onde-particule des photons, suite à leur conversion en plasmons, ont été rapportées [89, 90, 91, 92, 93].

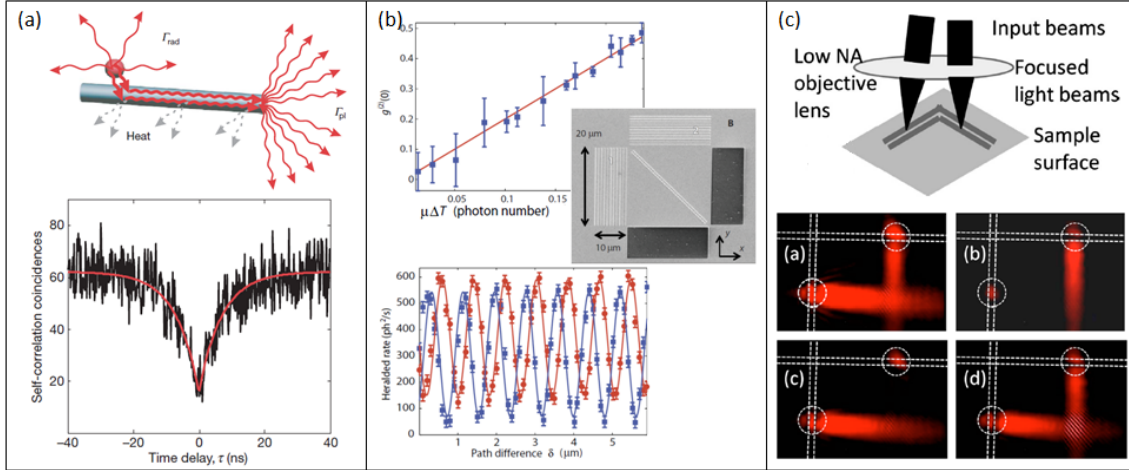


FIGURE 5.1 – (a) Conservation de la statistique de photon d’une boîte quantique de CdSe couplée un nanofil d’argent. Le creux à délai nul sur la mesure de la fonction d’autocorrélation en intensité  $g^2(\tau)$  démontre l’excitation de plasmon de surface unique. Tirée de [84]. (b) Image MEB d’un circuit plasmonique pour des expériences de dualité onde-corpuscule plasmonique. L’antibunching démontre la nature corpusculaire des plasmons et les interférences sa nature ondulatoire. Tirée de [85]. (c) Expérience de brouillage d’interférences basée sur l’imagerie LRM : (a) sans analyse de polarisation, (b) avec polariseur linéaire en sortie orienté à  $0^\circ$ , (c)  $90^\circ$ , (d)  $45^\circ$ . Tirée de [86].

Par exemple, Akimov et al. ont couplé une boîte quantique à un nanofil d’argent et ont observé une conservation de la statistique sub-poissonienne ainsi qu’une exaltation de 2.5 de l’émission spontanée de la source quantique [84] (Fig. 5.1(a)). La mise en évidence de ces propriétés quantiques ont bénéficié de l’élaboration de circuits adaptés à la manipulation des plasmons, comme dans l’expérience présentée sur la Fig. 5.1(b) qui démontre la dualité onde-corpuscule de plasmons propagatifs.

Dans ce contexte, l’objet d’étude de ce chapitre est de réaliser une plateforme plasmonique de brouillage d’interférence reposant sur le processus réciproque de l’effet spin Hall de la lumière (*Spin Hall Effect of Light*, SHEL). Comme discuté précédemment, l’élaboration de métamatériaux plasmoniques, dont les propriétés d’anisotropie et d’inhomogénéité peuvent être maîtrisées à l’échelle de la longueur d’onde, ont permis d’accroître considérablement les couplages spin-orbite de la lumière [25, 94]. Ces effets ont suscité un intérêt important pour la manipulation des différents degrés de liberté de la lumière. Ils devraient jouer un rôle essentiel dans les communications optiques, dont l’enjeu est d’augmenter la transmission de données en exploitant des degrés de liberté supplémentaires de la lumière [95]. Nous avons vu que ces phénomènes trouvent leur origine dans l’interaction entre le moment angulaire de spin intrinsèque du photon (polarisation circulaire) avec ses degrés de liberté spatiaux (moments angulaires orbitaux et linéaires). Ces couplages ont donné lieu à des phénomènes de SHEL [96, 31, 97] et plusieurs études ont montré que l’information sur le spin des photons pouvaient être convertie en ondes de surface de trajectoires opposées [98, 33, 99]. Or jusqu’à maintenant, le mécanisme inverse de SHEL

a reçu beaucoup moins d'attention [100, 101, 102, 32, 103]. Mentionnons toutefois que le découplage de modes de surfaces en rayonnement polarisé circulairement a été démontré au moyen de guides d'ondes diélectriques dans les régimes THz et visible [104, 105]. La motivation de ce travail est donc de réaliser un polariseur circulaire tout-plasmonique et contrôlé par la direction des plasmons. Un composant tout-plasmonique présente notamment l'avantage de simplifier le processus de fabrication et l'intégration des dispositifs plasmoniques [106]. Après avoir démontré l'adressage de la polarisation circulaire via les trajectoires des plasmons de surface, nous appliquons cette fonctionnalité à une expérience de brouillage d'interférence dans le régime classique. En effet, il convient de travailler en premier lieu en régime classique afin d'acquérir une compréhension approfondie des mécanismes physiques, pour envisager ensuite une application dans le domaine quantique. Par ailleurs, nous pouvons mentionner les travaux de Peralta et al. qui ont rapporté une expérience classique de la "gomme quantique" (Fig. 5.1(c)) afin d'imager le trajet des photons à l'interface métal-air en imagerie LRM [86, 107]. Notre polariseur plasmonique circulaire pourrait venir enrichir les outils nécessaires à la réalisation de circuits photoniques intégrés pour l'optique quantique.

## 5.2 Mécanisme de SHEL réciproque : Démonstration d'un polariseur circulaire plasmonique

### 5.2.1 Protocole expérimental

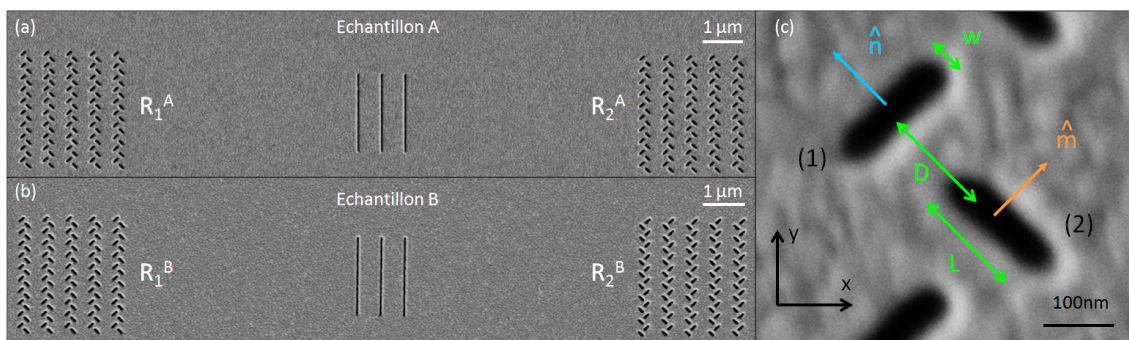


FIGURE 5.2 – (a-b) Images MEB des échantillons. (c) Agrandissement sur une nanostructure en  $T$  : longueur  $L = 200$  nm, largeur  $w = 50$  nm, distance de séparation  $D = 212$  nm.  $\hat{n}$  et  $\hat{m}$  indiquent l'orientation des dipôles majeurs induits par la fente (1) et (2), respectivement.

La conversion des plasmons en polarisation circulaire est réalisée à partir d'un réseau de nano-ouvertures en forme de  $T$ . Au cours de ce travail, nous examinerons deux échantillons différents A et B (images MEB sur les Fig. 5.2(a) et (b)). Chaque échantillon comprend trois fentes centrales qui seront utilisées comme lanceur de plasmons de surface (SP). De part et d'autre du lanceur, nous avons gravé deux réseaux constitués de  $5 \times 10 T$ , notés  $R_1^i$  et  $R_2^i$  ( $i = A, B$ ). Ces derniers sont gravés sur un film d'or opaque de 200 nm d'épaisseur. Afin de limiter la transmission



directe du faisceau laser incident, les sillons du lanceur SP n'ont été percés qu'à mi-profondeur. Les deux échantillons A et B se distinguent par l'orientation des  $T$  formant le réseau de droite  $R_2^i$  (par contre à gauche  $R_1^A=R_1^B$ ). Pour l'échantillon A, les réseaux  $R_1^A$  et  $R_2^A$  sont identiques (Fig. 5.2(a)). En revanche, pour l'échantillon B (Fig. 5.2(b)), les  $T$  qui forment le réseau  $R_2^B$  sont tournés d'un angle de  $90^\circ$  par rapport à  $R_1^B$ . Le réseau  $R_2^B$  est l'image miroir de  $R_1^B$  par rapport à l'axe horizontal  $Ox$ .

Ces réseaux ont été conçus afin de démontrer le processus inverse de l'excitation unidirectionnelle (discutée au Chapitre 2). On vise notamment à réaliser un réseau qui émette des photons de spin  $s = \pm 1$  lorsque celui-ci est illuminé par un faisceau plasmonique provenant de la droite ou de la gauche. La démonstration de cet effet réside dans le déphasage de  $\pm\pi/2$ , induit par la séparation entre les deux bras du  $T$ , soit une distance  $D/\sqrt{2} = \lambda_{SP}/4$  (longueur d'onde plasmons  $\lambda_{SP} = 603$  nm).

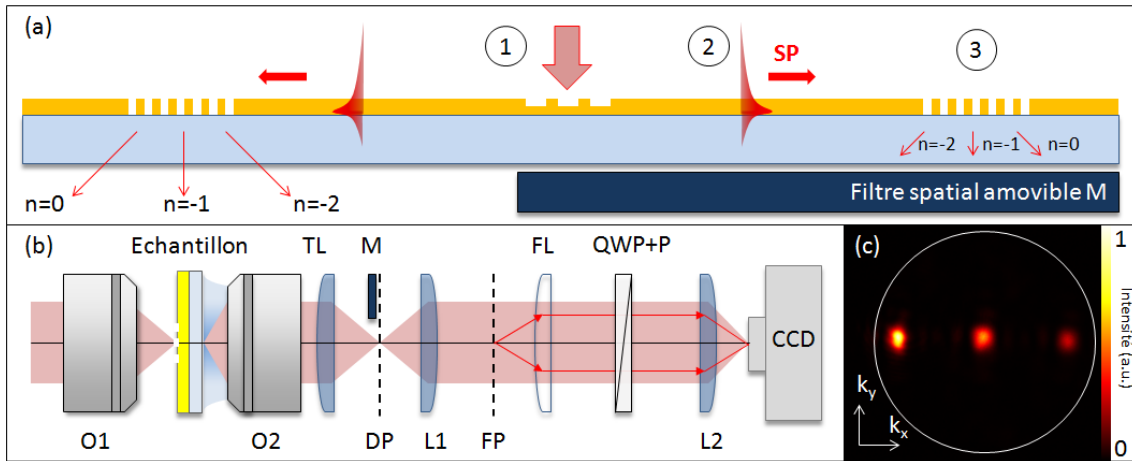


FIGURE 5.3 – (a) Vue latérale du mécanisme de SHEL réciproque : (1) Les plasmons sont produits par le lanceur SP. (2) Ils se propagent à la surface de l'échantillon en direction des réseaux. (3) Ils diffractent sur les réseaux et se découplent en lumière propagative. Un filtre spatial M peut être inséré dans le plan direct pour bloquer de faisceau diffracté par le deuxième réseau. (b) Schéma du montage optique : O1 objectif de microscope ( $40\times$ ,  $NA=0.75$ ), O2 objectif de microscope à immersion ( $100\times$ ,  $NA=1.45$ ), TL, L1, L2 lentilles convergentes, M filtre spatial amovible placé dans le plan direct (DP), FL lentille de Fourier amovible, QWP lame quart-d'onde, P polariseur linéaire. (c) Image mesurée dans plan de Fourier lorsque M est placé devant le réseau  $R_2^i$  ( $i=A, B$ ) de sorte que seul le rayonnement émis par le réseau  $R_1^i$  soit enregistré. Le cercle blanc de rayon  $k_0 NA$  indique le NA maximum de O2.

Le processus de SHEL réciproque que nous visons à démontrer met en jeu les trois mécanismes suivants (Fig. 5.3(a)) : le couplage de la lumière en plasmons de surface, leur propagation sur le film métallique, et leur découplage en ondes propagatives. Pour générer une onde plasmonique, nous focalisons sur le lanceur SP, un faisceau laser de polarisation linéaire normal aux fentes. Le montage expérimental est schématisé sur la Fig. 5.3(b). Le champ diffracté est ensuite mesuré dans le plan de Fourier. La période  $a$  selon  $x$  et  $y$  conditionnent les ordres de diffraction  $n$  détectable par le

système d'imagerie. Ici, les périodes horizontales et verticales respectives sont fixées à  $a_x = \lambda_{SP}$  et  $a_y = \lambda_{SP}/2$  afin de restreindre notre étude à la direction de propagation  $k_x$ . Les vecteurs d'onde correspondant aux ordres de diffraction s'écrivent :

$$k_x(n) = \pm k_{SP} + n\left(\frac{2\pi}{a_x}\right) = k_{SP}(n \pm 1), \quad (5.1)$$

$$k_y(n) = n\left(\frac{2\pi}{a_y}\right) = 2nk_{SP}. \quad (5.2)$$

avec  $\mathbf{k}_{SP} = \pm k_{SP}\hat{x}$  les vecteurs d'onde plasmons se propageant dans les directions respectives  $\pm\hat{x}$ . Dans la direction  $k_x$ , les ordres de diffraction mesurables par l'ouverture numérique de notre objectif de collection  $O_2$  sont  $n = 0, -1, -2$ . Dans la direction  $k_y$ , nous ne pouvons détecter que l'ordre  $n = 0$ . En effet, les ordres supérieurs se situent à l'extérieur du cône de lumière détectable par notre objectif de microscope. Afin de mettre en évidence la réponse en polarisation associée à chaque réseau, nous menons une analyse polarimétrique et cartographions des ellipses de polarisation en fonction de la fréquence spatiale  $\mathbf{k} = k_x\hat{x} + k_y\hat{y}$ .

## 5.2.2 Résultats : Découplage en polarisation circulaire

### Échantillon A

Commençons par la caractérisation de l'échantillon A. Pour déterminer séparément la réponse de chaque réseau  $R_1^A$  et  $R_2^A$ , nous plaçons un filtre spatial  $M$  dans le plan direct, de manière à bloquer la lumière émise par l'un des deux réseaux. La Fig. 5.3(c) correspond à la distribution d'intensité mesurée dans le plan de Fourier lorsque le filtre  $M$  coupe la lumière émise par le réseau de droite  $R_2^A$ . Cette configuration équivaut à étudier la réponse du réseau  $R_1^A$  excité par un faisceau plasmons provenant de la droite ( $\mathbf{k}_{SP} = -k_{SP}\hat{x}$ ). Dans la direction  $k_x$ , les positions des 3 ordres de diffraction enregistrés dans l'espace réciproque sont données par :

$$n = 0 \rightarrow k_x = -k_{SP}, \quad (5.3)$$

$$n = -1 \rightarrow k_x = 0, \quad (5.4)$$

$$n = -2 \rightarrow k_x = k_{SP}. \quad (5.5)$$

La différence d'intensité entre les trois signaux, s'explique par le fait que la majeure partie du signal est diffractée à l'ordre 0 soit à  $k_x = -k_{SP}$ . Notons qu'une excitation par des plasmons venant de la gauche ( $\mathbf{k}_{SP} = +k_{SP}\hat{x}$ ), se traduit par des ordres de diffraction situés à  $k_x(n = 0) = +k_{SP}$ ,  $k_x(n = -1) = 0$  et  $k_x(n = -2) = -k_{SP}$  (voir illustration Fig. 5.3(a)).

Sur la Fig. 5.3, nous avons superposé sur chacun de ces ordres, les ellipses de polarisations du champ diffracté. La première et la deuxième rangée d'images correspondent respectivement aux mesures effectuées sur  $R_1^A$  et  $R_2^A$ . Nous observons que la réponse en polarisation varie fortement selon  $n$ . D'une part, à l'ordre  $n = -1$ , le réseau émet une polarisation principalement circulaire. Plus précisément, nous mesurons,

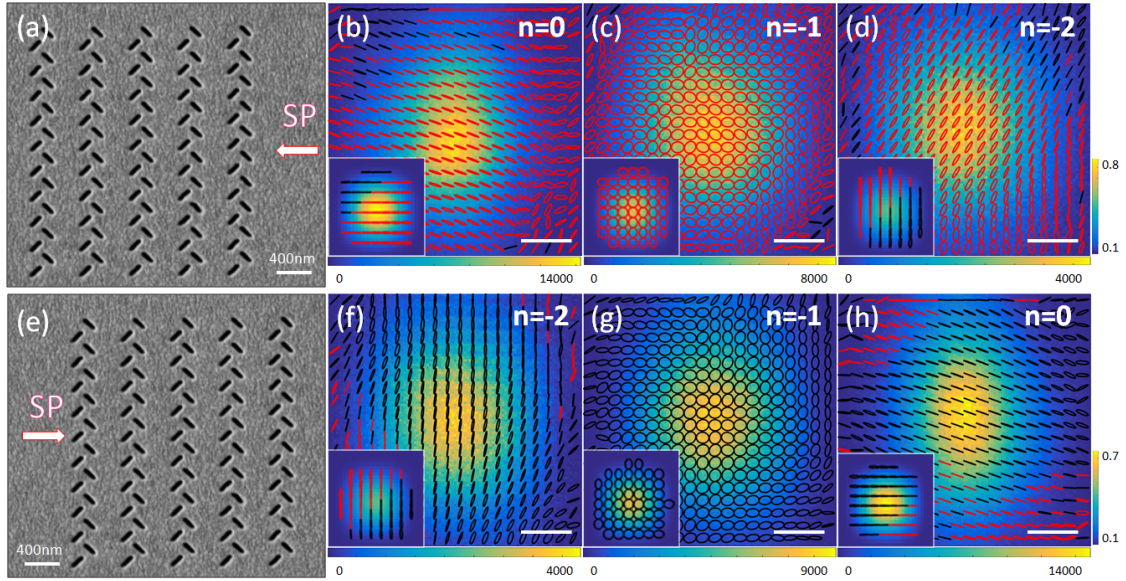


FIGURE 5.4 – Analyse polarimétrique de l'échantillon A. (a) Image MEB du réseau  $R_1^A$ . (b-d) Distribution d'intensité mesurée dans le plan de Fourier à l'ordre  $n=0$  (b),  $-1$  (c),  $-2$  (d). Code couleur des ellipses de polarisation : le rouge et le noir représentent respectivement un spin  $+1$  (polarisation circulaire gauche) et  $-1$  (polarisation circulaire droite). (e) Image MEB du réseau  $R_2^A$ . (f-h) Distribution d'intensité mesurée dans le plan de Fourier à l'ordre  $n=-2$  (f),  $-1$  (g),  $0$  (h). Inserts en bas à gauche : simulations théoriques. Barres d'échelle :  $3k_0 N.A./8$ . Échelles de couleur : Intensité (u.a.).

le long de l'axe optique ( $\mathbf{k}=0$ ), une onde polarisée **L** (spin  $+1$ ) ou **R** (spin  $-1$ ) selon la direction des plasmons  $\mathbf{k}_{SP} = \pm k_{SP} \hat{x}$ . Cette première observation révèle la capacité de notre dispositif à découpler une onde confinée en surface en photons propagatifs polarisés circulairement. Cette conversion est quantifiée par une valeur moyenne élevée du degré de polarisation circulaire  $\langle DCP \rangle = 0.88$ . Ces résultats constituent la démonstration expérimentale d'un polariseur plasmonique circulaire basé sur le processus de SHEL réciproque : les plasmons de surface acquièrent un moment angulaire de spin lors de leur interaction avec le milieu. L'information sur la trajectoire des plasmons  $\mathbf{k}_{SP} = \pm k_{SP} \hat{x}$  est transmise dans le spin  $\pm 1$  des photons.

D'autre part, notre approche expérimentale met en évidence un découplage des plasmons en polarisations quasi-linéaires à  $n = 0$  et  $-2$ . Pour comprendre cette dépendance avec  $n$  et pour analyser théoriquement le processus de SHEL réciproque, nous modélisons notre système à l'aide d'une description dipolaire.

### Modèle théorique

Considérons une nano-ouverture  $T$  sur laquelle se diffracte un faisceau plasmonique. Un moment dipolaire électrique est associé à chaque fente rectangulaire formant le  $T$ . Il est orienté selon la normale au grand axe (Fig. 5.2 (c)) et s'exprime comme suit :

$$\mathbf{E}(k) \propto (\hat{n} \cdot \mathbf{E}_{SP}(r_1)) \hat{n} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_1} + (\hat{m} \cdot \mathbf{E}_{SP}(r_2)) \hat{m} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_2}, \quad (5.6)$$

où  $\mathbf{r}_i$  est la position des fentes ( $i = 1, 2$ ) avec les normales respectives  $\hat{n} = \frac{1}{\sqrt{2}}(-1, 1)$  et  $\hat{m} = \frac{1}{\sqrt{2}}(1, 1)$ . L'origine des coordonnées est prise à la position du lanceur SP. Le champ plasmonique induit par le champ incident  $\boldsymbol{\mu} = \mu \hat{x}$  est décrit par  $\mathbf{E}_{SP}(r_i) = \frac{e^{\mp i\mathbf{k}_{SP} \cdot \mathbf{r}_i}}{\sqrt{|\mathbf{x}_i|}} (\boldsymbol{\mu} \cdot \hat{x}) \hat{x}$  [40, 41]. La distance entre le lanceur SP et les  $T$  étant beaucoup plus grande que  $D$  (avec  $D/\sqrt{2} = \lambda_{SP}/4$ ), nous faisons l'approximation que  $\sqrt{|\mathbf{x}_1|} \approx \sqrt{|\mathbf{x}_2|}$ . Nous trouvons que le champ rayonné  $\mathbf{E}_{\pm}(k_x)$  se simplifie de la manière suivante :

$$\mathbf{E}_{\pm}(k_x) \propto \frac{e^{-i(k_x \mp k_{SP})x_1}}{\sqrt{|\mathbf{x}_1|}} [(\hat{x} - \hat{y}) + (\hat{x} + \hat{y})e^{i(k_x \mp k_{SP})D/\sqrt{2}}], \quad (5.7)$$

où  $\pm$  fait référence à la direction de propagation des plasmons  $\mathbf{k}_{SP} = \pm k_{SP} \hat{x}$ . Finalement, nous vérifions que l'onde décrit les trois états de polarisation ci-dessous :

$$n = 0 \quad : \quad \mathbf{E}_{\pm}(k_x \approx \pm k_{SP}) \propto \mathbf{X}, \quad (5.8)$$

$$n = -1 \quad : \quad \mathbf{E}_{\pm}(k_x \approx 0) \propto (\mathbf{X} \mp i\mathbf{Y})/\sqrt{2}, \quad (5.9)$$

$$n = -2 \quad : \quad \mathbf{E}_{\pm}(k_x \approx \mp k_{SP}) \propto \mathbf{Y}. \quad (5.10)$$

Ce modèle analytique simple confirme le découplage des plasmons en polarisation circulaire à  $n = -1$  et en polarisation linéaires à  $n = 0$  et  $-2$ . Les simulations théoriques sont présentées dans les encarts de la Fig. 5.4 et sont en accord avec nos résultats expérimentaux. Elles incluent notamment les effets d'imagerie induits par les optiques du montage [72]. Nous constatons toutefois des divergences entre nos mesures et les prédictions théoriques. Nous mesurons des polarisations légèrement elliptiques sur la Fig. 5.4(d) et une rotation des polarisations linéaires sur les Fig. 5.4 (b) et (h). Ces déviations peuvent provenir d'erreurs expérimentales comme un désalignement du montage optique ou des polariseurs. Comme nous l'avons démontré au chapitre précédent, des défauts de fabrication peuvent aussi expliquer ces effets de polarisation [68, 98, 108].

## Échantillon B

Passons maintenant à l'analyse de l'échantillon B. La réponse associée à chacun des réseaux est présentée sur la Fig. 5.5. Comme le réseau  $R_1^B$  est identique à  $R_{1,2}^A$  de l'échantillon A, nous retrouvons les mêmes caractéristiques entre les Fig. 5.4(a-d) et Fig. 5.5(a-d) : une polarisation circulaire gauche à  $n = -1$ , linéaire  $\mathbf{X}$  à  $n = 0$  et linéaire  $\mathbf{Y}$  à  $n = -2$ . Cette répétabilité atteste de la robustesse de notre dispositif à agir comme un polariseur circulaire.

Les états de polarisations mesurés pour le réseau de droite  $R_2^B$  sont présentés sur les Fig. 5.5(f-h). Nous pouvons comprendre ces résultats à partir du réseau  $R_2^A$  de

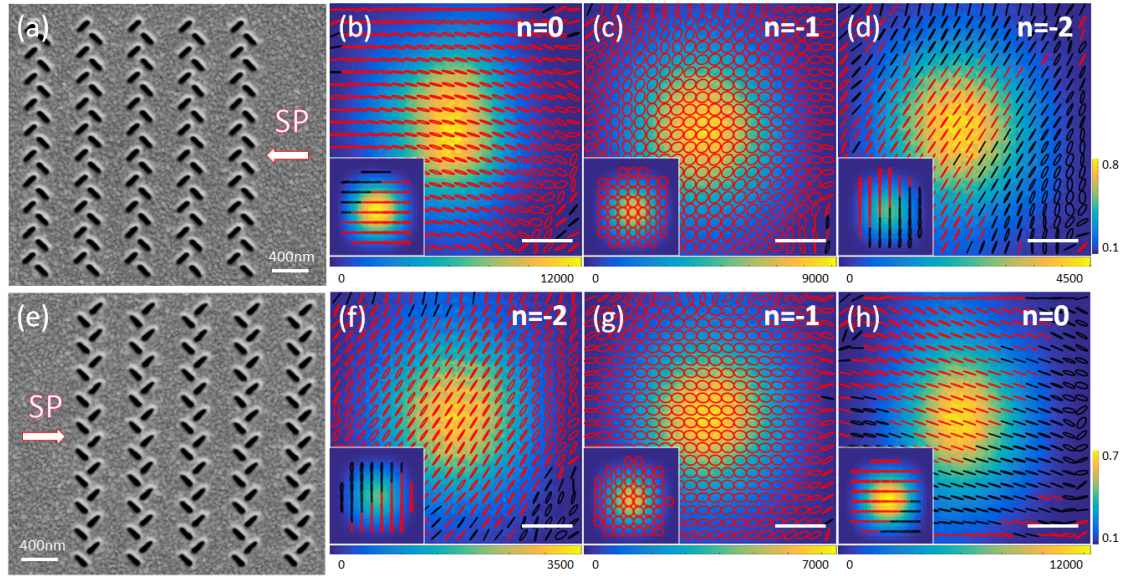


FIGURE 5.5 – Analyse polarimétrique de l'échantillon B. (a) Image MEB du réseau  $R_1^B$ . (b-d) Distribution d'intensité mesurée dans le plan de Fourier à l'ordre  $n=0$  (b),  $-1$  (c),  $-2$  (d). Code couleur des ellipses de polarisation : le rouge et le noir représentent respectivement un spin  $+1$  (polarisation circulaire gauche) et  $-1$  (polarisation circulaire droite). (e) Image MEB du réseau  $R_2^B$ . (f-h) Distribution d'intensité mesurée dans le plan de Fourier à l'ordre  $n=-2$  (f),  $-1$  (g),  $0$  (h). Inserts en bas à gauche : simulations théoriques. Barres d'échelle :  $3k_0 N.A./8$ . Échelles de couleur : Intensité (u.a.).

l'échantillon A en raisonnant par symétrie. En effet, comme les réseaux  $R_2^A$  et  $R_2^B$  sont symétriques par rapport à l'axe  $Ox$ , la réponse de  $R_2^B$  peut se déduire de  $R_2^A$  (Fig. 5.4(f-h)) par symétrie. Aux ordres  $n = -2$  et  $0$ , nous vérifions effectivement les mêmes états linéaires  $\mathbf{Y}$  et  $\mathbf{X}$  pour les deux échantillons. Au centre par contre, nous obtenons une polarisation circulaire opposée, c'est à dire gauche. Ainsi, pour une même direction de propagation des plasmons  $+k_{SP}\hat{x}$ , nous pouvons donc choisir d'émettre des photons polarisés  $\mathbf{R}$  ou  $\mathbf{L}$  en ajustant orientation des  $T$ . Alors que pour l'échantillon A, les photons émis par les 2 réseaux sont de spins opposés, pour l'échantillon B, les photons sont émis avec le même spin.

Lors de ce travail, nous avons donc réalisé des polariseurs circulaires, planaires et tout-plasmoniques. Basé sur le couplage de SHEL inverse, notre dispositif permet de générer des photons polarisés circulairement dont le spin est déterminé par la trajectoire des plasmons. Nous proposons maintenant d'utiliser ce système pour marquer le chemin des plasmons dans une expérience de brouillage d'interférences.

### 5.3 Dispositif plasmonique de brouillage d'interférence

Les tentatives d'approfondir notre compréhension des propriétés quantiques des plasmons ont abouti à une large gamme de circuits plasmoniques opérant au niveau quantique, offrant ainsi de nouvelles opportunités pour construire des systèmes photoniques quantiques intégrés [88]. L'expérience de la gomme quantique vise à démontrer le principe de complémentarité entre la connaissance du chemin emprunté par la particule et l'observation des franges d'interférence [109, 86]. Dans l'étude qui va suivre, nous avons réalisé une plateforme plasmonique de brouillage d'interférence, expérience nous avons menée dans le régime classique. Travailler dans le domaine classique est notamment fondamental pour bien identifier les phénomènes physiques mis en jeu et contribuera à une meilleure compréhension lorsqu'ils seront appliqués au régime quantique.

Dans le régime classique, nous vérifions que toute information accessible sur le trajet emprunté par les plasmons s'accompagne d'une disparition des franges. Dans cette étude, les ondes émises par les réseaux  $R_1^i$  et  $R_2^i$  ( $i = A, B$ ) sont maintenant mesurées simultanément et sans analyse polarimétrique. Nous retirons le filtre spatial  $M$  et les polariseurs d'analyse.

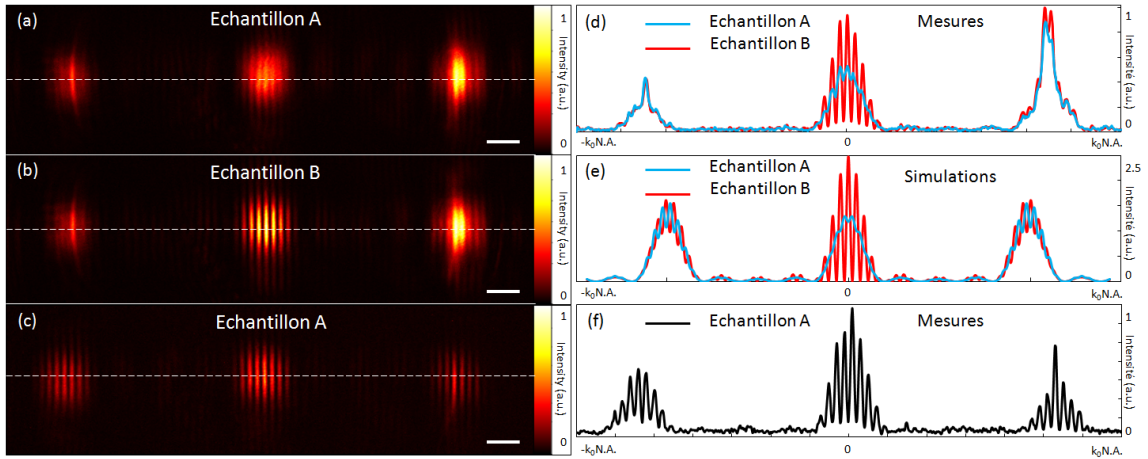


FIGURE 5.6 – (a-b) Images enregistrées dans le plan de Fourier pour l'échantillon A (a) et B (b) sans polariseur linéaire. (c) Image enregistrée dans le plan de Fourier pour l'échantillon A avec polariseur linéaire. (d) Profils d'intensité mesurés selon la ligne blanche pointillée pour l'échantillon A (courbe bleue) et B (courbe rouge). (e) Simulations des profils d'intensité pour l'échantillon A (courbe bleue) et B (courbe rouge). (f) Profil d'intensité mesuré selon la ligne blanche pointillée sur la Fig. (c) pour l'échantillon A avec polariseur linéaire. Barres d'échelle :  $k_0 N.A./16$

### 5.3.1 Discernabilité des plasmons

L'intensité enregistrée sur l'échantillon A est présentée sur la Fig. 5.6(a). Nous détectons au sein des trois ordres de diffraction un motif d'interférence de faible visibilité. Sur la coupe Fig. 5.6 (d), nous mesurons autour de  $k_x = 0$  une visibilité moyenne  $\langle V_A \rangle = 0.16 \pm 0.01$ . Les 2 signaux piqués à  $k_x = \pm k_{SP}$  correspondent à des plasmons résiduels qui fuient à travers le film métallique. La différence d'intensité entre les trois ordres de diffraction et ces deux pics s'explique par à un léger désalignement du faisceau laser incident.

Une analogie avec l'expérience des fentes d'Young permet de comprendre le brouillage d'interférence observé. Celle-ci prédit que la connaissance sur le trajet emprunté par les photons engendre un brouillage des franges d'interférence. En positionnant un filtre spatial devant l'une des deux fentes 1 ou 2, nous savons par quelle fente sont émis les photons. Cette information sur le trajet des photons conduit à une visibilité nulle. Remplaçons la double fente par les deux réseaux plasmoniques  $R_1^A$  et  $R_2^A$ . Ici, aucun filtre n'est utilisé. Le brouillage d'interférence s'explique par le fait que l'information sur la trajectoire des plasmons a été stocké dans le spin des photons émis. Les réseaux émettent des photons de spin +1 pour des plasmons venant de la droite (Fig. 5.4 (c)), et réciproquement, des spins -1 pour une excitation par la gauche (Fig. 5.4 (g)). L'information sur le trajet des plasmons est marquée par chaque réseau. Pris simultanément, cela se traduit par l'émission de deux polarisations circulaires opposées. Ces polarisations étant orthogonales, elles ne peuvent donc pas interférer, d'où le brouillage des franges. Ce marquage du chemin met donc en évidence la nature corpusculaire des plasmons de surface.

### 5.3.2 Plasmons indiscernables

Selon le principe de complémentarité, une connaissance précise sur le comportement ondulatoire des photons implique une perte d'information sur leur nature corpusculaire. Pour démontrer cette propriété, analysons l'échantillon B. Sur la Fig. 5.6 (b), nous observons qu'au centre de la figure d'interférence, les franges sont beaucoup plus marquées. La visibilité moyenne correspondante est de  $\langle V_B \rangle = 0.82 \pm 0.01$ , ce qui est remarquablement plus élevée que la valeur mesurée pour l'échantillon A. En effet, quelque soit le chemin suivi par les plasmons, les réseaux  $R_1^B$  et  $R_2^B$  rayonnent la même polarisation circulaire gauche (Fig. 5.5 (c), (g)). Etant donné que les photons ont tous le même spin, le trajet des plasmons n'est plus marqué. Ces photons indiscernables peuvent donc interférer, ce qui donne lieu au motif d'interférence.

L'information sur la nature corpusculaire des plasmons n'est toutefois pas complètement perdue. Nous constatons une absence de frange dans les ordres latéraux  $n = 0, -2$ . A ces ordres, les champs émis par  $R_1^B$  et  $R_2^B$  sont polarisés linéairement et sont orthogonaux. A  $k_x = -k_{SP}$  par exemple, les plasmons provenant de la droite sont marqués par une polarisation  $\mathbf{X}$ , alors que s'ils viennent de la gauche par une polarisation  $\mathbf{Y}$ . Ces observations sont en concordance avec les simulations théoriques présentées sur la Fig. 5.6(e) : alors que l'indiscernabilité des photons au centre conduit à une perte d'information sur la nature corpusculaire des plasmons, le

brouillage des franges sur les côtés suggère que l'information n'est pas complètement détruite.

### 5.3.3 Expérience classique de la "gomme quantique"

Pour détruire complètement cette information et acquérir une connaissance totale sur les propriétés ondulatoires des plasmons, nous insérons entre l'échantillon A et le capteur CCD, un polariseur linéaire orienté à  $45^\circ$ . Quelque soit l'ordre de diffraction, les photons émis sont tous polarisés à  $45^\circ$ , et deviennent alors indiscernables. Cela se traduit par un motif d'interférence bien défini aux trois ordres de diffraction comme observé sur les Fig. 5.6(c) et (f). Cette restauration des franges d'interférence signifie que toute information relative au chemin suivi par les plasmons a été effacé.

## 5.4 Conclusion

En exploitant le mécanisme de SHEL réciproque, nous avons réalisé un polariseur circulaire plasmonique. Ce dispositif confirme que l'information relative au trajet des plasmons de surface peut être encodée dans le spin des photons. Les capacités du système sont testées dans une expérience de brouillage d'interférence pour discuter la dualité onde-particule des plasmons. Bien que démontré dans le régime classique, notre dispositif pourrait s'appliquer au régime quantique afin d'approfondir notre compréhension des propriétés quantiques des plasmons. Ce travail ouvre des perspectives encourageantes pour la manipulation à l'échelle nanométrique de photon unique à l'aide de dispositifs plasmoniques [85].

Dans ce travail, nous avons exploité le couplage spin-orbite afin de manipuler le moment angulaire de spin de la lumière. Dans le chapitre suivant, nous nous appuyerons sur ces interactions pour manipuler les moments angulaires orbitaux et générer des vortex plasmoniques.





# Chapitre 6

## Lentilles de vortex plasmoniques

### Sommaire

---

<b>6.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>103</b>
<b>6.2</b>	<b>Génération de vortex plasmoniques à partir de cavités spirales</b>	<b>105</b>
6.2.1	Protocole expérimental	105
6.2.2	Analyse théorique	106
6.2.3	Résultats expérimentaux	107
<b>6.3</b>	<b>"Métopirales" : des lentilles convergentes de vortex plasmoniques</b>	<b>114</b>
6.3.1	Analyse théorique	115
6.3.2	Résultats expérimentaux	116
<b>6.4</b>	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>122</b>

---

### 6.1 Introduction

La sensibilité élevée à la polarisation ainsi que le champ important confiné à la surface des nanostructures plasmoniques a entraîné l'émergence des lentilles de vortex plasmoniques (*Plasmonic Vortex Lens*, PVL) dont l'objectif est de manipuler, à l'échelle sub-longueur d'onde, les différents moments angulaires de la lumière [112]. Par l'intermédiaire du couplage spin-orbite, les structures chirales telles que les spirales plasmoniques permettent notamment de transférer le SAM (*Spin Angular Momentum*) d'une onde incidente propagative en une onde de surface de OAM (*Orbital Angular Momentum*) donné, ouvrant ainsi de nouvelles opportunités notamment dans les communications optiques [95] et la nano-manipulation optique [113]. Par exemple, Tsai et al. ont démontré que selon la polarisation circulaire incidente, une PVL spirale peut soit piéger une particule, soit la mettre en mouvement de rotation [114]. La mise en forme en vortex des plasmons de surface a été démontrée par Gorodetski et al. [115] en 2008. Dans ce travail pionnier, une spirale gravée sur un film métallique est éclairée en champ lointain par une lumière polarisée circulairement. Le moment angulaire de spin provenant de l'onde d'excitation est transféré aux plasmons de surface via la PVL. La synthèse des vortex plasmoniques est mise

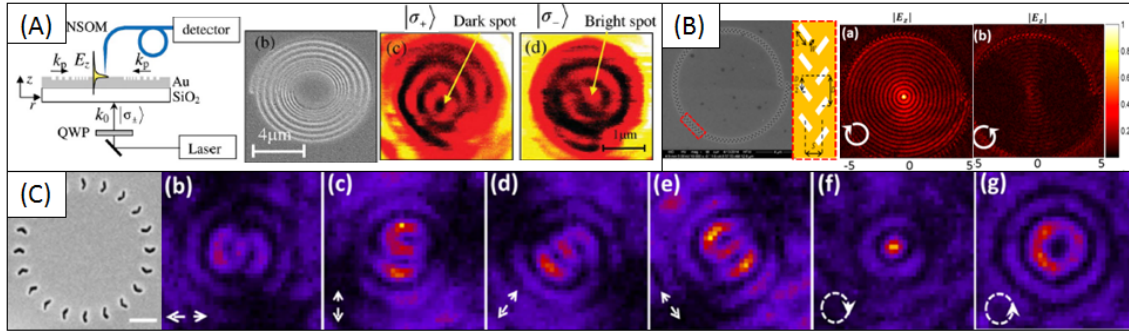


FIGURE 6.1 – (a) De gauche à droite : Schéma du montage SNOM en mode détection, image MEB de la PVL, distribution en intensité lorsque la PVL est illuminée avec une polarisation circulaire droite ( $|\sigma_+\rangle = 1$ ) et gauche ( $|\sigma_-\rangle = -1$ ). Tirées de [110]. (b) Image SEM d'une PVL associant métasurface et géométrie spirale pour optimiser la focalisation des plasmons. Tirées de [36]. (c) Analyse en polarisation de vortex plasmoniques générés par une PVL achirale. Tirées de [111].

en évidence au moyen d'un SNOM en mode détection. Le montage et les résultats sont présentés sur la Fig 6.1(a). Ils démontrent que la PVL génère des vortex dont l'OAM dépend du spin incident : l'intensité bascule d'un minimum à un maximum central lorsque l'illumination passe de la polarisation circulaire droite à circulaire gauche. Diverses géométries de PVL ont été proposées par la suite, en combinant notamment les spirales avec les propriétés locales des métamatériaux [116, 117]. Par exemple, la "métaspirale", représentée sur la Fig 6.1(b), est inspirée des travaux de Lin et al. [33] sur la directionnalité radiale des plasmons et rapporte une focalisation des plasmons avec un meilleur contraste par rapport aux lentilles plasmoniques conventionnelles, et cela grâce à la sensibilité des structures élémentaires en  $T$  avec le SAM d'excitation [36].

Dans la littérature, les vortex plasmoniques sont en grande partie analysés à l'aide d'un SNOM en mode collection. Comme mentionné précédemment, cette méthode de détection rend difficile l'analyse en polarisation du champ plasmon. Pour une meilleure compréhension et manipulation des vortex plasmoniques, on se propose ici de mener une analyse complète en polarisation des modes contenus dans les vortex plasmoniques à l'aide de l'imagerie LRM. Ce travail s'inscrit dans la continuité de notre étude réalisée en collaboration avec Q. Jiang et A. Zhao sur des PVL achirales (Fig. 6.1(c)) [38, 111]. Dans ce chapitre, nous allons analyser deux types de PVL : des cavités spirales formées de sillons continus et des "métaspirales" [36] constituées de nanostructures en forme de  $\Lambda$  et disposées selon une géométrie spirale. Après une description analytique du mécanisme de transfert du SAM incident en OAM plasmonique, nous examinerons en détail les modes de polarisation et l'adressage sélectif des vortex plasmoniques selon le SAM et la chiralité des PVL spirales simples continues. La règle de sélection OAM mise en évidence lors de cette étude sera ensuite appliquée à la compréhension de PVL plus complexes telles que les métaspirales. Nous montrerons que les structures élémentaires en  $V$  ou  $\Lambda$  offre un degré de liberté

supplémentaire dans la manipulation des plasmons de surface, en particulier, dans le contrôle conjoint de l'intensité et de l'état orbital des vortex via la polarisation circulaire incidente.

## 6.2 Génération de vortex plasmoniques à partir de cavités spirales

### 6.2.1 Protocole expérimental

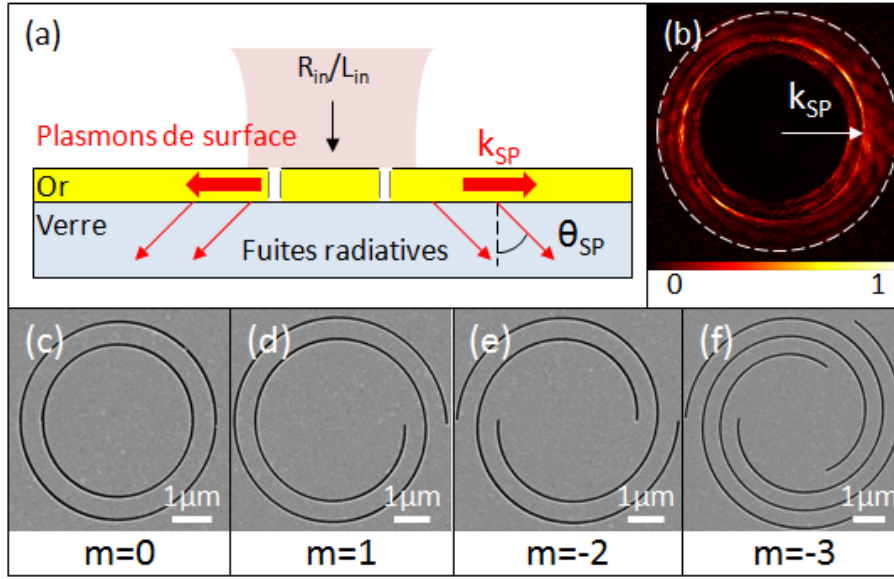


FIGURE 6.2 – (a) Principe de la mesure par imagerie LRM. (b) Plan de Fourier : le rayon du cercle en pointillé est de  $k_0 NA$ . Echelle de couleur : Intensité (u.a.). (c-f) Images MEB des échantillons.

Les vortex plasmoniques sont générés par des structures en forme de spirales (Fig. 6.2 (d-f)). Ces systèmes sont gravés par FIB sur un film d'or d'épaisseur 50 nm. L'épaisseur est choisie de manière à pouvoir caractériser les plasmons par imagerie LRM (Fig. 6.2(a)). Les sillons (largeur moyenne 100 nm) sont excités par un faisceau laser polarisé circulairement  $\mathbf{L}_{in}$  ou  $\mathbf{R}_{in}$ . Pour bloquer la transmission directe de ce dernier, nous plaçons un filtre spatial dans le plan de Fourier (Fig. 6.2(b)). Nous retirons ensuite la lentille de Fourier pour imaginer les plasmons dans l'espace direct. Enfin, nous insérons entre la caméra CCD et l'échantillon des filtres polarisants qui nous permettront de reconstruire la polarisation des vortex plasmoniques. En base polaire  $(O, \hat{\rho}, \hat{\theta})$ , une spirale d'Archimède est mathématiquement définie par :

$$\rho(\theta) = \frac{a}{2\pi} m \theta \quad \text{avec} \quad \theta \in [\theta_0 = \frac{2\pi\rho_0}{am}; \theta_0 + 2\pi q], \quad (6.1)$$

où  $\rho_0 = 2\mu m$  est la distance entre le point de départ de la spirale et le centre et  $q$  le nombre de tours effectués. Le pas  $a = \lambda_{SP}$  est choisi de manière à maximiser

l'excitation des plasmons. La charge géométrique  $m$  correspond au nombre de bras de la spirale. En particulier, nous caractériserons des spirales avec  $m = 1, -2$  et  $-3$ . Les résultats obtenus seront comparés à un échantillon de référence non-chiral ( $m = 0$ ) constitué de deux cercles concentriques (Fig. 6.2(c)).

## 6.2.2 Analyse théorique

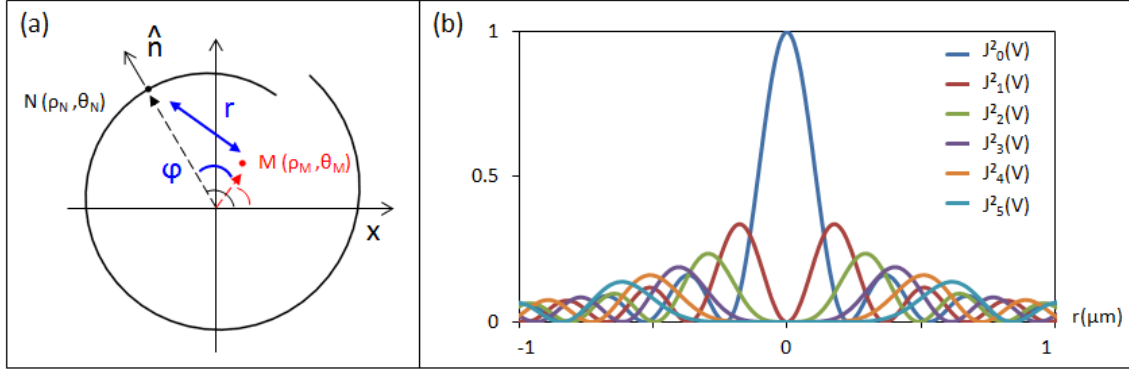


FIGURE 6.3 – (a) Notations utilisées dans l'analyse théorique. (b) Fonction de Bessels  $J_l^2$  d'ordre  $l$  en fonction de  $V = k_{sp}r$ .

Considérons une PVL de charge géométrique  $m$ , illuminée par un champ incident  $\mathbf{E}_s^{in}$  polarisé circulairement droite ( $\mathbf{S}=\mathbf{R}_{in}$ ) ou gauche ( $\mathbf{L}_{in}$ ). Le dipôle induit au point N du sillon est donné par :

$$\boldsymbol{\mu}_N = (\mathbf{E}_s^{in} \cdot \hat{n}) \hat{n}, \quad (6.2)$$

avec  $\hat{n}$  la normale à la spirale au point N (Fig. 6.3(a)). Le champ total plasmonique au point M est calculé en sommant la contribution de tous les dipôles disposés uniformément le long du sillon :

$$\mathbf{E}_s^{sp}(M) \propto \int_{\text{Spirale}} \frac{e^{i\mathbf{k}_{sp} \cdot \mathbf{r}}}{\sqrt{|\mathbf{r}|}} (\boldsymbol{\mu}_N \cdot \hat{r}) \hat{r} dl, \quad (6.3)$$

avec  $\hat{r} = \mathbf{r}/|\mathbf{r}|$ . Déterminons le champ plasmonique produit en un point M pris proche du centre de la spirale :

- Sachant que  $a \ll \rho_0$ , une spirale faisant  $q$  tours sera décrite comme  $q$  cercles concentriques de rayons  $\rho_q = \rho_N + qma$ ,
- Sachant que  $\rho_M \ll \rho_0$ , nous pouvons considérer que  $\hat{n} \approx \hat{r} \approx \hat{\rho}$  et  $\mathbf{k}_{sp} \cdot \mathbf{r} \approx k_{sp}\rho_q - k_{sp}r_M \cos(\varphi)$ .

Le champ plasmonique exprimé sur la base des polarisations circulaires  $\mathbf{R}_{out}$  et  $\mathbf{L}_{out}$  s'écrit :

$$\mathbf{E}_s^{sp}(M) \simeq \sum_q \frac{e^{ik_{sp}\rho_q}}{2\rho_q} \oint e^{ik_{sp}r_M \cos(\varphi)} \left\{ e^{i(m+s+1)(\theta_M+\varphi)} \mathbf{R}_{out} + e^{i(m+s-1)(\theta_M+\varphi)} \mathbf{L}_{out} \right\} d\varphi. \quad (6.4)$$

Nous en déduisons  $\mathbf{E}_s^{sp} = \mathbf{E}_s^{R_{out}} + \mathbf{E}_s^{L_{out}}$  avec :

$$\mathbf{E}_s^{R_{out}}(M) \simeq \sum_q \frac{e^{ik_{sp}\rho_q}}{2\rho_q} e^{i(m+s+1)\theta_M} J_{m+s+1}(V) \mathbf{R}_{out}, \quad (6.5)$$

$$\mathbf{E}_s^{L_{out}}(M) \simeq \sum_q \frac{e^{ik_{sp}\rho_q}}{2\rho_q} e^{i(m+s-1)\theta_M} J_{m+s-1}(V) \mathbf{L}_{out}, \quad (6.6)$$

où  $J_l$  fait référence à la fonction de Bessel d'ordre  $l$  et  $V = k_{sp}r_M$ . Nous avons tracé sur la Fig. 6.3(b), l'allure des fonctions de Bessel  $J_l^2$  pour des ordres allant de  $l = 0$  à 5. Les champs décrits respectivement par  $\mathbf{E}_s^{R_{out}}$  et  $\mathbf{E}_s^{L_{out}}$  représentent les champs plasmons mesurés sur les bases circulaires de spin  $s' = \pm 1$ , lorsque le système est excité par une polarisation circulaire de spin  $s = \pm 1$ . L'intensité générée au voisinage du centre de la PVL s'exprime comme suit :

$$I_s^{s'} \propto J_{m+s-s'}^2(V). \quad (6.7)$$

Par conséquent, notre modèle prédit qu'en ajustant les paramètres géométriques de la PVL ( $m$ ) et en fonction de la polarisation incidente ( $s$ ), nous pouvons conditionner le moment angulaire orbital des vortex plasmoniques selon la règle :  $l = m + s - s'$ . Le couplage spin-orbite est alors régi par une règle de sélection comme indiquée dans le tableau ci-dessous :

	$\mathbf{R}_{out}$	$\mathbf{L}_{out}$
$\mathbf{R}_{in}$	$l=m$	$l=m-2$
$\mathbf{L}_{in}$	$l=m+2$	$l=m$

TABLE 6.1 – Règle de sélection OAM pour une PVL de charge géométrique  $m$ .

### 6.2.3 Résultats expérimentaux

Dans les travaux pionniers de Gorodetski et al. [115] et Lin et al. [33], l'influence du spin incident sur le moment angulaire orbitale a été mis en lumière. Dans la continuité de ces travaux, nous cherchons ici à caractériser la distribution spatiale des modes de polarisation contenus dans ces vortex par le biais de l'imagerie LRM et vérifier expérimentalement la règle de sélection théorique démontrée précédemment.

#### Lentille plasmonique non-chirale

Analysons tout d'abord les modes plasmoniques générés par un système non-chiral ( $m = 0$ ) comme représenté sur l'image MEB de la Fig. 6.2(c). Les images LRM ainsi que les simulations analytiques sont présentées sur la Fig. 6.4. Lorsque les polarisations d'entrée et de sortie sont identiques ( $\mathbf{R}_{in}/\mathbf{R}_{out}$  et  $\mathbf{L}_{in}/\mathbf{L}_{out}$ ), le signal présente un extremum central, soit un OAM nul. Au contraire, entre polariseurs croisés, l'onde manifeste une singularité au centre, caractéristique d'un vortex optique. En effet, le système étant non-chiral, les vortex répondent de manière symétrique par rapport

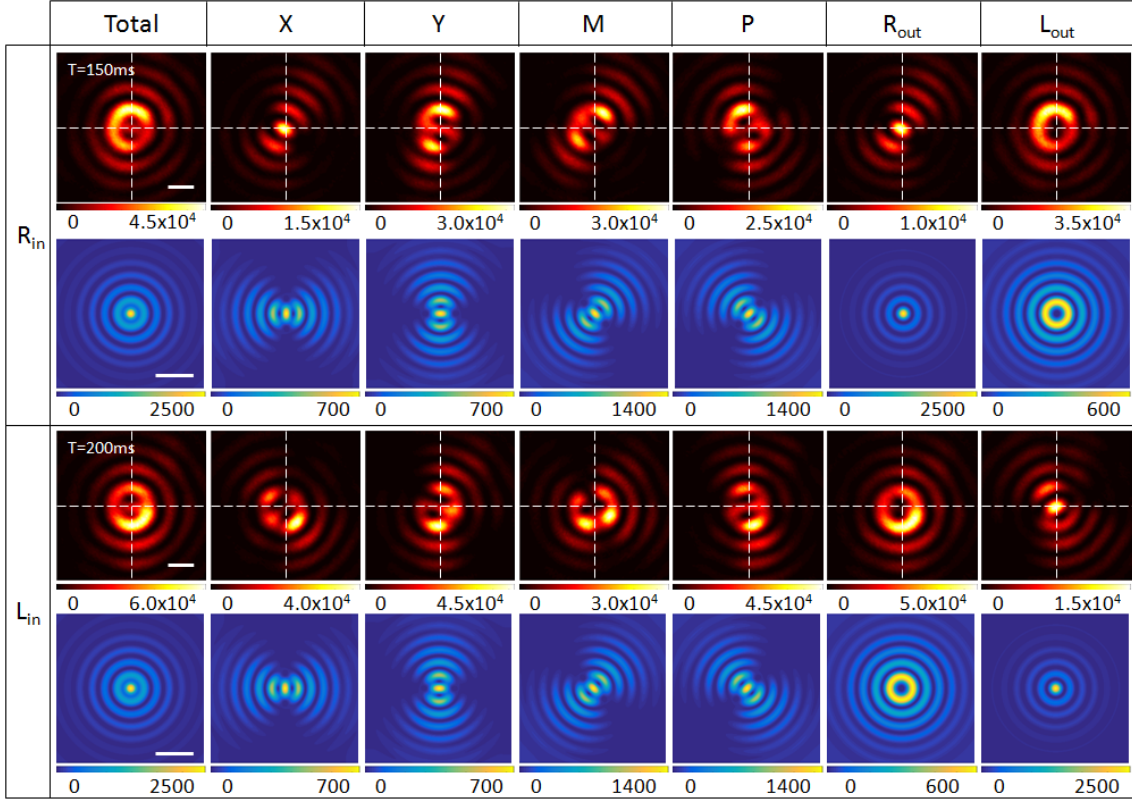


FIGURE 6.4 – Analyse polarimétrique du signal LRM pour la PVL achirale ( $m = 0$ ). T désigne le temps d’acquisition de l’image. Barres d’échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

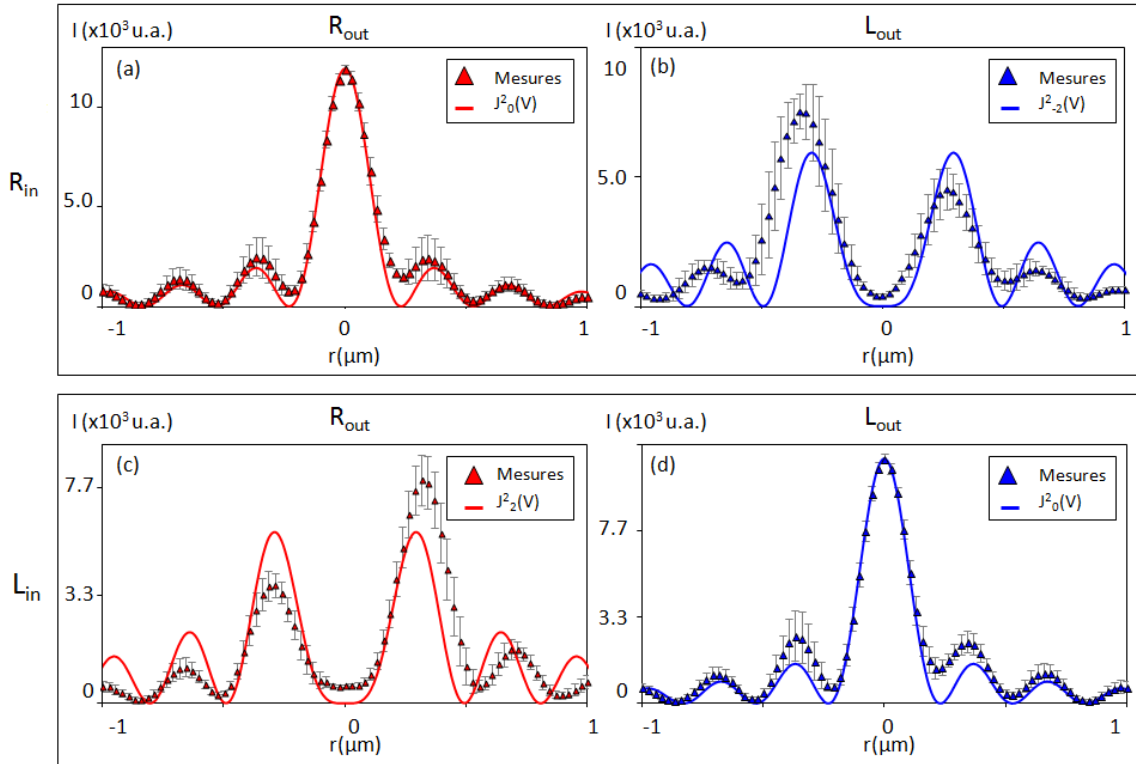


FIGURE 6.5 – Profils d’intensité mesurés et théoriques ( $V = k_{sp}r$ ) réalisés sur la PVL achirale ( $m = 0$ ).

au spin incident. Ceci est en accord avec nos prédictions théoriques, que nous avons résumées dans le tableau ci-dessous (Tab. 6.2) :

$m = 0$	$\mathbf{R}_{out}$	$\mathbf{L}_{out}$
$\mathbf{R}_{in}$	$J_0^2(V)$	$J_{-2}^2(V)$
$\mathbf{L}_{in}$	$J_2^2(V)$	$J_0^2(V)$

TABLE 6.2 – Règle de sélection OAM pour la PVL achirale.

Par ailleurs, la comparaison entre les modes polarisés linéairement montre qu'ils présentent une structure identique quelque soit le spin incident. Ils sont tous formés d'un maximum entouré de 2 lobes latéraux. Seule l'orientation du motif est modifiée. Cela peut se comprendre intuitivement étant donné que toute polarisation linéaire peut s'exprimer comme la somme des polarisations  $\mathbf{R}$  et  $\mathbf{L}$ .

Pour analyser quantitativement ces diagrammes, nous effectuons une coupe radiale sur les images projetées sur la bases  $\mathbf{R}_{out}$  et  $\mathbf{L}_{out}$ . Les barres d'incertitudes correspondent à l'écart type obtenu pour 10 profils d'intensité pris avec différents angles  $\theta$  autour de  $\mathbf{r} = 0$ . Premièrement, on mesure sur les profils (a) et (d) une largeur à mi-hauteur moyenne  $\phi = 228 \pm 26 \text{ nm}$ , correspondant à une erreur relative de 4% par rapport à la valeur théorique  $\phi_{theo} = 216 \text{ nm}$ . En accord avec [118], on démontre que les anneaux plasmoniques peuvent focaliser la lumière au delà de la limite de diffraction. Deuxièmement, nous mesurons le diamètre du premier anneau  $r_l$  de la fonction de Bessel d'ordre  $l$ . On constate effectivement que la position des premiers maximums de la fonction  $J_2^2(V)$  s'accordent bien avec l'allure des courbes expérimentales dont le diamètre moyen mesure  $r_2 = 620 \pm 25 \text{ nm}$ . Cette valeur est légèrement supérieure au diamètre théorique  $r_{2,theo} = 579 \text{ nm}$ , soit une erreur relative de 7%. On remarque toutefois une asymétrie entre les lobes de droite et de gauche, qui peut s'expliquer par des erreurs expérimentales, comme un tilt de l'échantillon.

### Lentilles de vortex plasmonique chirales

En remplaçant cet échantillon à symétrie rotationnelle, par des PVL chirales de charges géométriques  $m = 1, -2$  et  $-3$ , nous pouvons générer une grande diversité topologique, dont les ordres sont sensibles à l'état de polarisation d'entrée.

$m = 1$	$\mathbf{R}_{out}$	$\mathbf{L}_{out}$
$\mathbf{R}_{in}$	$J_1^2(V)$	$J_{-1}^2(V)$
$\mathbf{L}_{in}$	$J_3^2(V)$	$J_1^2(V)$

TABLE 6.3 – Règle de sélection OAM pour la PVL  $m = +1$ .



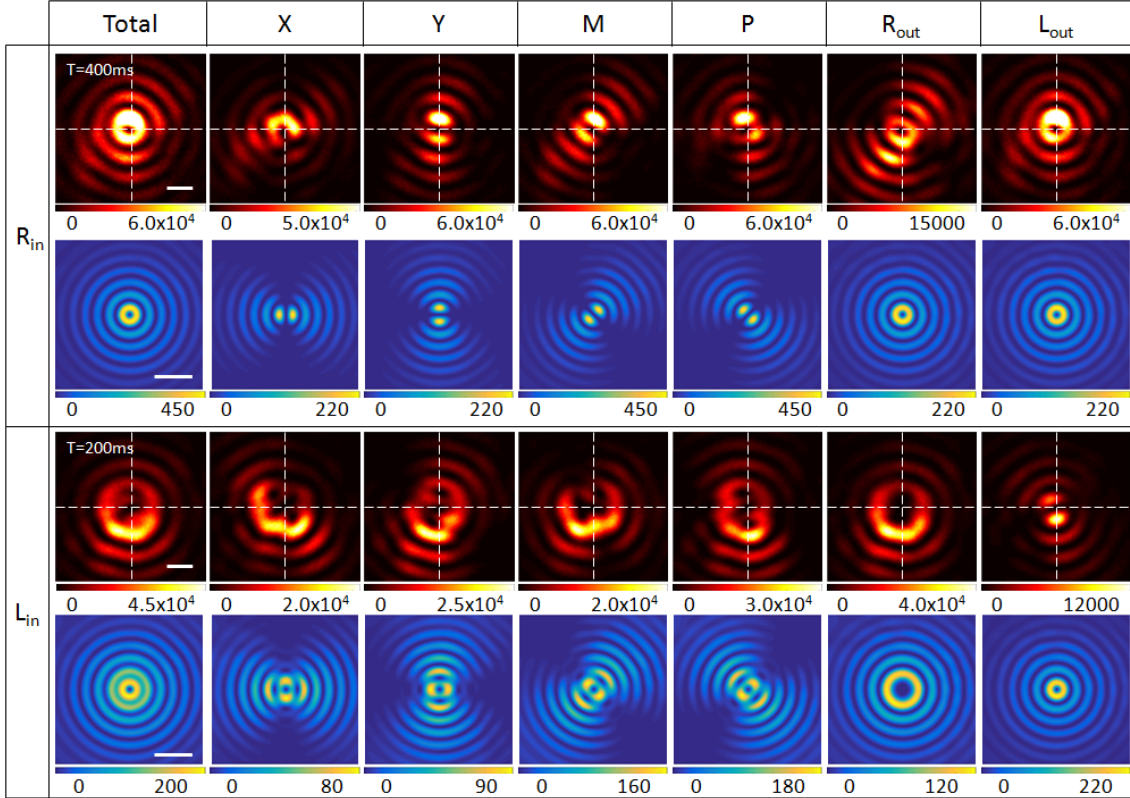


FIGURE 6.6 – Analyse polarimétrique du signal LRM pour la PVL  $m = +1$ .  $T$  désigne le temps d’acquisition de l’image. Barres d’échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

**$m=+1$**  : Les données expérimentales sont présentées sur la Fig. 6.6. Pour une polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$ , on remarque que le signal plasmonique est dominé par des modes de polarisation présentant un minimum central. En accord avec la théorie, les diagrammes correspondant à  $\mathbf{R}_{out}$  et  $\mathbf{L}_{out}$  apparaissent comme des vortex de diamètre similaire. Bien que cette PVL soit chirale, cette symétrie s’explique par le fait que les fonctions de Bessel  $J_1^2(V)$  et  $J_{-1}^2(V)$  présentent la même distribution spatiales. La règle de sélection pour  $m = 1$  est résumée dans le Tab. 6.3.

Contrairement à ce qui a été observé pour la lentille plasmonique circulaire, on observe qu’en basculant la polarisation d’entrée à  $\mathbf{L}_{in}$ , les modes de polarisations (linéaires et circulaires) sont fondamentalement modifiés. Les signaux  $\mathbf{R}_{out}$  et  $\mathbf{L}_{out}$  correspondent à des contenus orbitaux distincts avec une extension spatiale plus importante dans le cas de  $\mathbf{R}_{out}$ .

Quantitativement, on mesure un diamètre moyen  $r_1 = 368 \pm 26 \text{ nm}$  dont l’erreur relative négligeable pour le vortex d’ordre  $l = 1$ . Pour le vortex d’ordre  $l = 3$ , on mesure  $r_3 = 850 \pm 34 \text{ nm}$  avec une erreur relative de 8% par rapport à la valeur théorique  $r_{3,theo} = 790 \text{ nm}$ . Les profils d’intensité sont présentés en Annexes A (Fig. A.1).

Notons que ces résultats diffèrent de ceux rapportés dans [115] : en utilisant un SNOM en mode détection, les auteurs mesurent pour une spirale  $m = 1$  un signal total (sans analyse de polarisation) de la forme  $J_0^2(V)$  pour  $\mathbf{L}_{in}$  et  $J_2^2(V)$  pour  $\mathbf{R}_{in}$ . En effet, cette technique de mesure est principalement sensible à la composante normale du champ plasmonique. Celle-ci est donnée en coordonnées radiales  $(O, r, \theta)$  par :  $\mathbf{E}_z(r, \theta) = E_0 e^{ik_z z} e^{il_z \theta} J_{l_z}(k_{sp} r) \hat{z}$ , où  $k_z$  est le vecteur d'onde perpendiculaire à la surface de l'échantillon. Dans cette configuration, la règle de sélection OAM s'écrit alors  $l_z = -(s + m)$ . Dans notre cas, l'imagerie LRM mesure la composante planaire du champ plasmon et est donc régie par une règle de sélection OAM différente.

**m=-2 :** Alors que les modes d'une spirale  $m = 1$  sont dominés par deux structures vortex différentes  $|l| = 1$  et  $3$ , on montre ici qu'une PVL de charge supérieure (Fig. 6.7) permet de produire jusqu'à 3 types de vortex distincts (Tab. 6.4). Les modes singuliers produits par cette PVL sont présentés sur la Fig. 6.7. Comme précédemment, des coupes d'intensité ont été effectuées sur les images  $\mathbf{R}_{out}$  et  $\mathbf{L}_{out}$  pour déterminer le diamètre des vortex (voir Annexes A, Fig. A.2). Les résultats sont indiqués dans le Tab. 6.5. Cette même structure permet de générer une focalisation à la limite de la diffraction  $J_0^2(V)$  mais également des vortex de tailles variables, ce qui laisse entrevoir des applications possibles dans les communications optiques [5]. Bien que quantitativement, nous retrouvons un bon accord entre le modèle et les mesures, on peut observer des disparités entre les diagrammes expérimentaux et théoriques. Cette observation met en évidence que les défauts d'alignement et la précision des polariseurs sont déterminant dans la structure des vortex obtenus.

$m = -2$	$\mathbf{R}_{out}$	$\mathbf{L}_{out}$
$\mathbf{R}_{in}$	$J_{-2}^2(V)$	$J_{-4}^2(V)$
$\mathbf{L}_{in}$	$J_0^2(V)$	$J_{-2}^2(V)$

TABLE 6.4 – Règle de sélection OAM pour la PVL de  $m = -2$ .

$ l $	Mesures	Théorie	Erreur relative
0	$219 \pm 4 \text{ nm}$	$216 \text{ nm}$	1 %
2	$594 \pm 74 \text{ nm}$	$579 \text{ nm}$	3 %
4	$1055 \pm 23 \text{ nm}$	$1000 \text{ nm}$	6%

TABLE 6.5 – Largeurs à mi-hauteur et diamètres des vortex  $r_l$  mesurés pour la PVL  $m = -2$ .

**m=-3 :** Dans notre étude, le cas extrême du couplage spin-orbite optique est démontré avec une PVL de  $m = -3$  (Fig. 6.2(f)). La tendance que possède le rayon du vortex à augmenter avec charge géométrique  $m$  est clairement mis en évidence sur la Fig. 6.8. Or, cet élargissement est accompagné d'une diminution d'intensité du premier anneau. L'analyse d'une spirale avec une charge géométrique élevée révèle

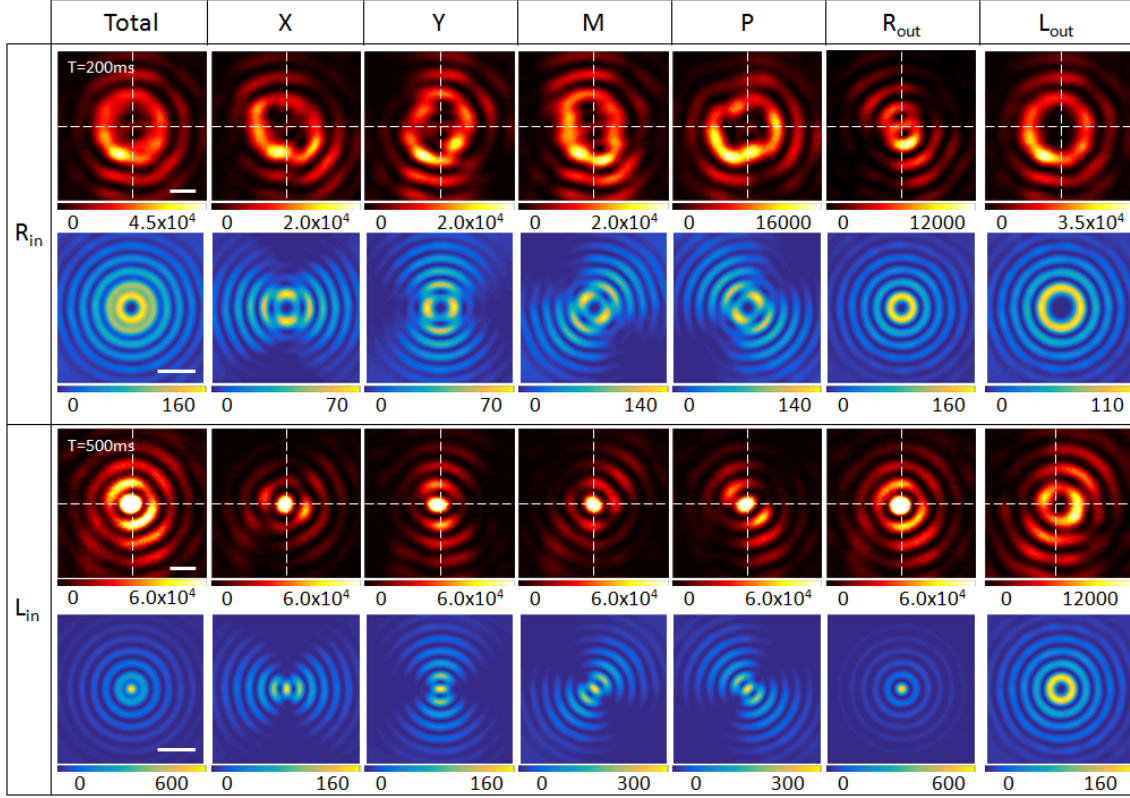


FIGURE 6.7 – Analyse polarimétrique du signal LRM pour la PVL  $m = -2$ .  $T$  désigne le temps d’acquisition de l’image. Barres d’échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

la diversité des modes vortex qu’on peut produire avec ces systèmes ainsi que la capacité de la technique LRM à détecter des moments angulaires supérieurs de faible intensité, ici jusqu’à  $|l| = 5$ . La manipulation des états orbitaux est résumée dans le Tableau 6.6. En polarisation circulaire croisée, l’état du spin incident permet d’adresser la partie orbitale en passant d’un ordre  $l = 1$  à un ordre 5 fois plus élevé. Les mesures des diamètres des vortex sont regroupées dans le Tab. 6.7 (voir Annexes A, Fig. A.3 pour les profils d’intensité). On constate que nous pouvons produire des vortex dont les diamètres peuvent atteindre environ  $1.2 \mu m$ .

$m = -3$	$\mathbf{R}_{out}$	$\mathbf{L}_{out}$
$\mathbf{R}_{in}$	$J_{-3}^2(V)$	$J_{-5}^2(V)$
$\mathbf{L}_{in}$	$J_{-1}^2(V)$	$J_{-3}^2(V)$

TABLE 6.6 – Règle de sélection OAM pour une PVL de charge géométrique  $m = -3$ .

Enfin, dans le but de comparer quantitativement la dépendance du diamètre  $r_l$  avec l’ordre des vortex, nous avons reporté les données expérimentales prises sur les PVL  $m = 0, +1, -2$  et  $-3$  sur le graphe Fig. 6.9. On remarque que  $r_l$  suit fidèlement les prédictions théoriques, à l’exception de  $|l| = 2$  et  $3$ . Comme nous le verrons par la

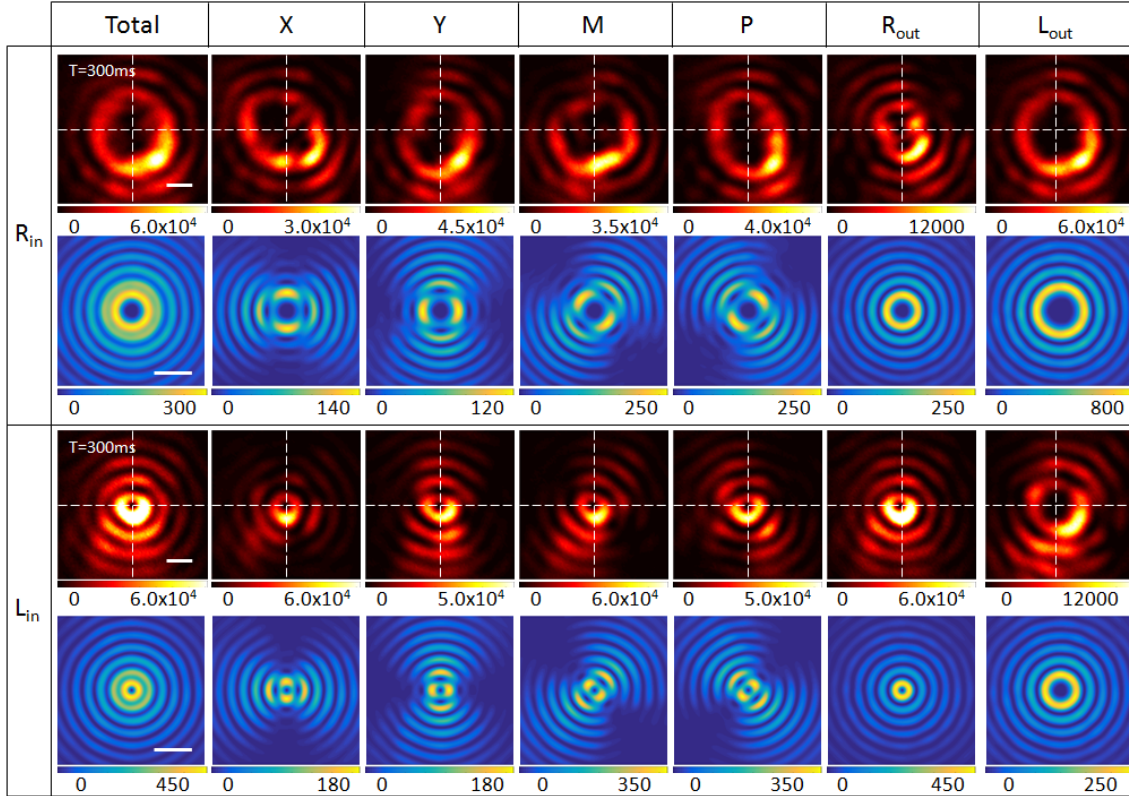


FIGURE 6.8 – Analyse polarimétrique du signal LRM pour la PVL  $m = -3$ .  $T$  désigne le temps d'acquisition de l'image. Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

$ l $	Mesures	Théorie	Erreur relative
1	$361 \pm 18 \text{ nm}$	$368 \text{ nm}$	2%
3	$817 \pm 4 \text{ nm}$	$789 \text{ nm}$	7%
5	$1263 \pm 41 \text{ nm}$	$1210 \text{ nm}$	4%

TABLE 6.7 – Largeur à mi-hauteur et diamètres des vortex  $r_l$ .

suite et en accord avec [36], il est possible d'améliorer la qualité des vortex produits à l'aide de PVL formées de  $V$  ou  $\Lambda$ . Par exemple, en polarisations linéaires, bien qu'on puisse reconnaître les motifs globaux prévus par la théorie, il est toutefois difficile de discerner les lobes latéraux. Les "métaspirales" permettront d'améliorer le contraste des images et d'observer les traits caractéristiques des vortex avec une meilleure résolution.

## Bilan

En adéquation avec la littérature, nous avons démontré la synthèse de vortex plasmoniques à l'aide de cavités plasmoniques spirales. Notre méthode basée sur l'imagerie LRM apparaît comme une méthode complémentaire pour examiner les transferts

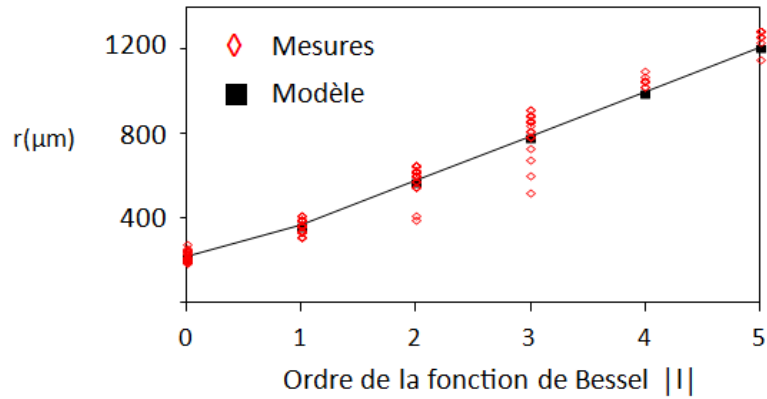


FIGURE 6.9 – Diamètres moyens du pic central et des vortex en fonction de l'ordre de la fonction de Bessel  $|l|$  mesurés sur les PVL  $m = 0, 1, -2$  et  $-3$ .

de SAM aux plasmons de surface et présente l'avantage de pouvoir s'affranchir des contraintes liées au régime champ proche. En travaillant en espace libre, nous pouvons donc acquérir une information supplémentaire sur les modes de polarisation contenus dans les vortex et conduire des mesures quantitatives sur les différents profils spatiaux.

### 6.3 "Métaspirales" : des lentilles convergentes de vortex plasmoniques

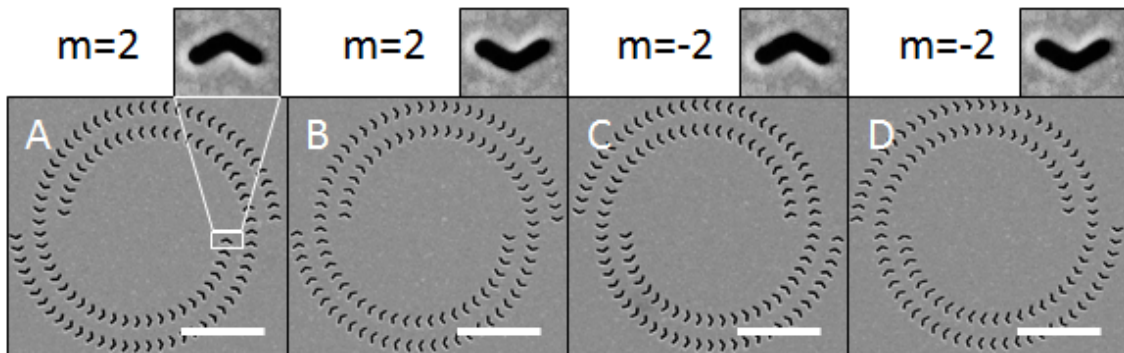


FIGURE 6.10 – Images MEB des échantillons. Barre d'échelle :  $2\mu\text{m}$ .

A partir de cette analyse détaillée des lentilles de vortex plasmoniques, nous pouvons maintenant nous consacrer à l'étude de systèmes plus complexes tels que les métaspirales. Lorsque la PVL est formée d'un sillon continu, une proportion égale de plasmons se propage vers l'intérieur et l'extérieur du système. Or, pour des applications en microscopie par exemple, le pouvoir de focalisation des PVL est un paramètre crucial car il peut conditionner le rapport signal sur bruit ainsi que la

résolution des images [36]. Il a été montré précédemment [33, 38, 111] que la directionnalité radiale peut être contrôlée via le spin incident par l'intermédiaire de nano-ouvertures en forme de  $\Lambda$  disposées selon un cercle. En manipulant localement la phase, on peut créer une lentille plasmonique qui sera convergente ou divergente selon le spin incident.

Dans les travaux antérieurs cités ci-dessus, la symétrie rotationnelle des anneaux est brisée par l'orientation des  $\Lambda$ . En arrangeant ces  $\Lambda$  non pas en cercle mais selon une spirale, nous pouvons ajouter un deuxième degré de chiralité aux structures et ainsi favoriser la formation d'un vortex spécifique. Sur la Fig. 6.10, nous présentons les quatre configurations chirales possibles pour une PVL en spirale : considérons la nanostructure élémentaire située à  $\mathbf{r} = (\rho_0; 0)$  (encadrée en blanc). Celle-ci peut être orientée soit vers le bas comme un  $V$  soit vers le haut comme un  $\Lambda$ . A cela nous combinons la charge géométrique de la spirale qui peut prendre les valeurs  $m = \pm 2$ , ce qui engendre quatre énantiomères. Pour une polarisation incidente donnée  $\mathbf{R}_{in}$  ou  $\mathbf{L}_{in}$ , les plasmons seront concentrés selon que la spirale est composée de  $V$  ou de  $\Lambda$ . Le contenu orbital du vortex sera quant à lui conditionné par la charge géométrique de la spirale  $m$ .

### 6.3.1 Analyse théorique

Pour prédire la réponse de ces métaspirales, nous nous appuyons sur le raisonnement précédent, élaboré pour les PVL spirales continues, et y intégrons le modèle multipolaire développé dans [38]. En sommant la contribution de chaque dipôle induit par une nano-ouverture  $\Lambda$  ou  $V$ , nous en déduisons le champ plasmonique total au voisinage de la métaspirale  $\mathbf{E}_s^{sp} = \mathbf{E}_s^{Rout} + \mathbf{E}_s^{Lout}$  où :

$$\mathbf{E}_s^{Rout}(M) \simeq C_s \sum_q \frac{e^{ik_{sp} \cdot \rho_q}}{2\rho_q} e^{i(m+s+1)\theta_M} J_{m+s+1}(V) \mathbf{R}_{out}, \quad (6.8)$$

$$\mathbf{E}_s^{Lout}(M) \simeq C_s \sum_q \frac{e^{ik_{sp} \cdot \rho_q}}{2\rho_q} e^{i(m+s-1)\theta_M} J_{m+s-1}(V) \mathbf{L}_{out}, \quad (6.9)$$

soit l'intensité des vortex correspondant :

$$I_s^{s'} \propto |C_s|^2 J_{m+s-s'}^2(V), \quad (6.10)$$

où  $V = k_{sp} r_M$ . L'intégration continue sur la spirale se justifie par le fait que la période entre deux nanostructures est fixée à  $\lambda_{sp}/2 \ll \rho_0$ .

Nous rappelons que l'efficacité du système à concentrer les plasmons au centre est caractérisée par le facteur de directivité  $C_s$ . Pour le cas d'un  $\Lambda$  où le demi-angle entre les deux bras vaut  $\alpha = 45^\circ$ , il est défini par :

$$C_s^\Lambda = (n_1^x + isn_1^y) \cdot n_1^x + (n_2^x + isn_2^y) \cdot n_2^x e^{ik_{sp} D/\sqrt{2}} \quad (6.11)$$

$$= (1+s)(1+i), \quad (6.12)$$

avec  $\hat{n}_1 = (1; 1)^T / \sqrt{2}$ ,  $\hat{n}_2 = (-1; 1)^T / \sqrt{2}$  les normales aux grands axes des rectangles formant les  $\Lambda$ ,  $s = \pm 1$  le spin incident. Nous avons simplifié le modèle et

négligé la contribution du dipôle mineur ( $\beta = 0$ ) afin de dégager une interprétation intuitive de la réponse des PVL. Nous en déduisons :

$$C_{-1}^{\Lambda} \ll C_{+1}^{\Lambda} \quad \Rightarrow \quad I_{-1}^{s'} \ll I_{+1}^{s'}. \quad (6.13)$$

Cela signifie qu'au voisinage du centre de la PVL, les modes vortex générés par un spin  $s = +1$  ( $\mathbf{L}_{in}$ ) est dominant par rapport à ceux produits par une excitation  $s = -1$  ( $\mathbf{R}_{in}$ ). Réciproquement, nous déterminons la directivité associée à une nanostructure  $V$  en inversant le rôle de  $\hat{n}_1$  et  $\hat{n}_2$  :

$$C_s^V = (1 - s)(1 - i) \quad \Rightarrow \quad C_{+1}^V \ll C_{-1}^V. \quad (6.14)$$

L'intensité des vortex d'une métaspire formée de  $V$  est plus élevée lorsque celle-ci est éclairée par un spin  $s = -1$  ( $\mathbf{R}_{in}$ ) que par  $s = +1$  ( $\mathbf{L}_{in}$ ).

### 6.3.2 Résultats expérimentaux

Dans ce paragraphe, nous présentons les résultats mesurés sur une métaspire de charge géométrique  $|m| = 2$ . Le demi-angle entre les deux bras est de  $\alpha = 60^\circ$ . Cette valeur est basée sur notre étude antérieure [38] qui démontre une directionnalité optimale pour cet angle. La reproductibilité de la méthode expérimentale est confirmée en examinant une métaspire de charge géométriques  $|m| = 1$ , dont les résultats sont disponibles en Annexes C. Dans un souci d'exhaustivité, nous comparons ici les résultats obtenus pour chaque métaspire (Fig. 6.11, 6.14, 6.17, 6.20). Nous chercherons notamment à vérifier expérimentalement l'Eq. 6.10.

Observons tout d'abord l'intensité plasmonique totale, c'est à dire sans analyse de polarisation (Fig. 6.11-6.20(b)). D'une part, on constate que lorsque la PVL est constituée de  $\Lambda$  (comme les échantillons A et C), la focalisation est observée pour une polarisation incidente  $\mathbf{L}_{in}$  (Fig. 6.11(b)(ii), 6.17(b)(ii)). On distingue clairement le motif résultant des interférences des plasmons au centre : des anneaux concentriques pour A et un maximum central pour C. En revanche, pour une incidence  $\mathbf{R}_{in}$ , le signal est délocalisé et se répartit sur toute la surface de l'échantillon (Fig. 6.11(b)(i), 6.17(b)(i)). Ce comportement est dû à la directionnalité radiale des nanostructures  $\Lambda$  :  $C_{-1}^{\Lambda} \ll C_{+1}^{\Lambda}$ , ce qui entraîne une focalisation des plasmons pour  $s = +1$  alors que pour  $s = -1$ , les plasmons vont interférer destructivement. En accord avec notre modèle et nos travaux précédents sur les cercles [38, 111], l'orientation des  $\Lambda$  rompt la symétrie rotationnelle du système d'où la dépendance avec le spin incident de l'intensité plasmonique au centre.

Inversement, les PVL formées de  $V$  (échantillons B et D) focalisent les plasmons lorsqu'elles sont éclairées avec une polarisation  $\mathbf{R}_{in}$  (Fig. 6.14(b)(i), 6.20(b)(i)). En réalisant des coupes d'intensité, comme indiqué en pointillé, sur les diagrammes présentant des maxima centraux, nous estimons un rapport d'extinction moyen de 0.52. Cette valeur concorde bien avec [36].

D'autre part, comme prévu par nos résultats sur les PVL continues, la structure des vortex manifeste également une dépendance avec la charge géométrique  $m = \pm 2$ .

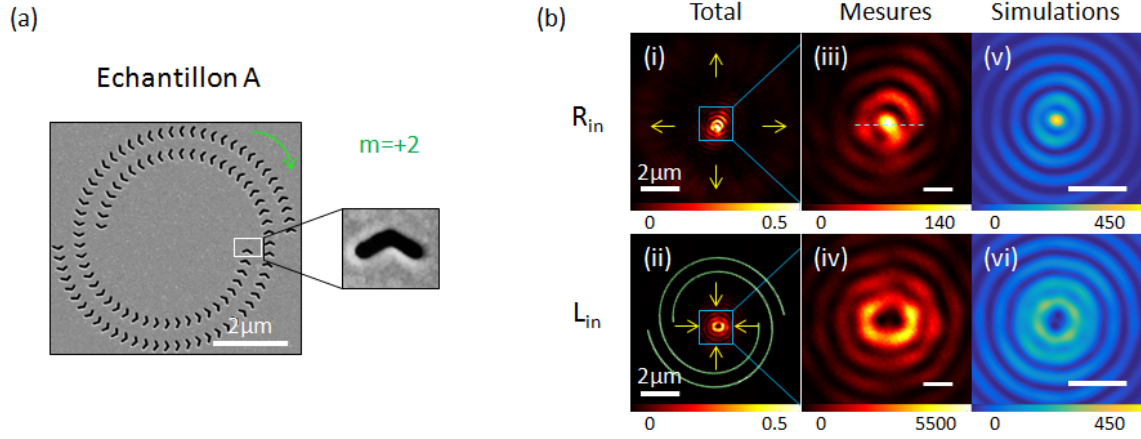


FIGURE 6.11 – (a) Image MEB de l'échantillon. (b) Mesures et simulations sans analyse de polarisation. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$  ou  $\mathbf{L}_{in}$ . Les flèches jaunes indiquent la direction de propagation des plasmons et la spirale verte indique la position des nanostructures. Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

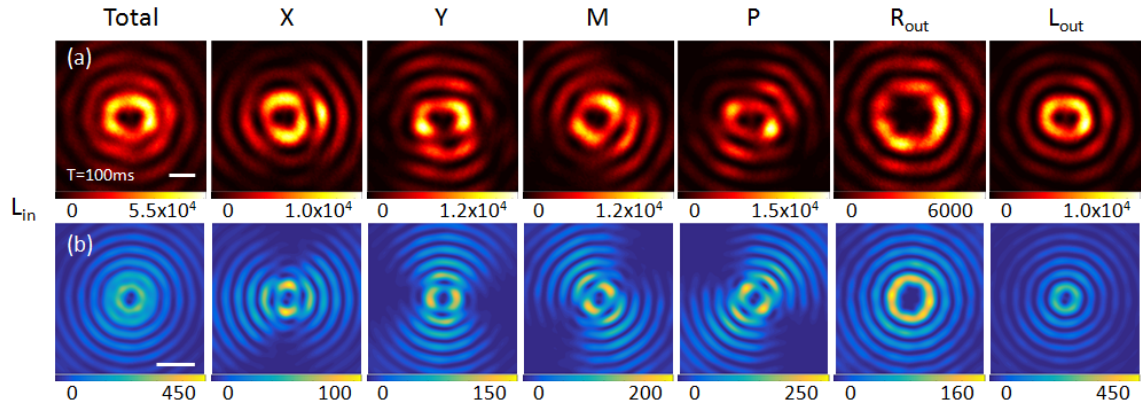


FIGURE 6.12 – Analyse polarimétrique des images LRM (a) expérimentales, (b) théoriques pour l'échantillon A. Polarisation incidente  $\mathbf{L}_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

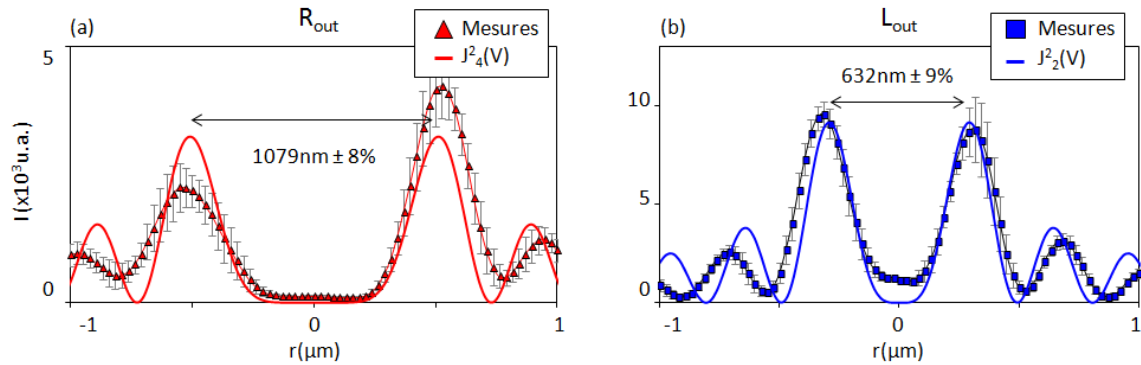


FIGURE 6.13 – Profils d'intensité analysés en polarisation (a)  $\mathbf{R}_{out}$  et (b)  $\mathbf{L}_{out}$ . Polarisation incidente  $\mathbf{L}_{in}$ .



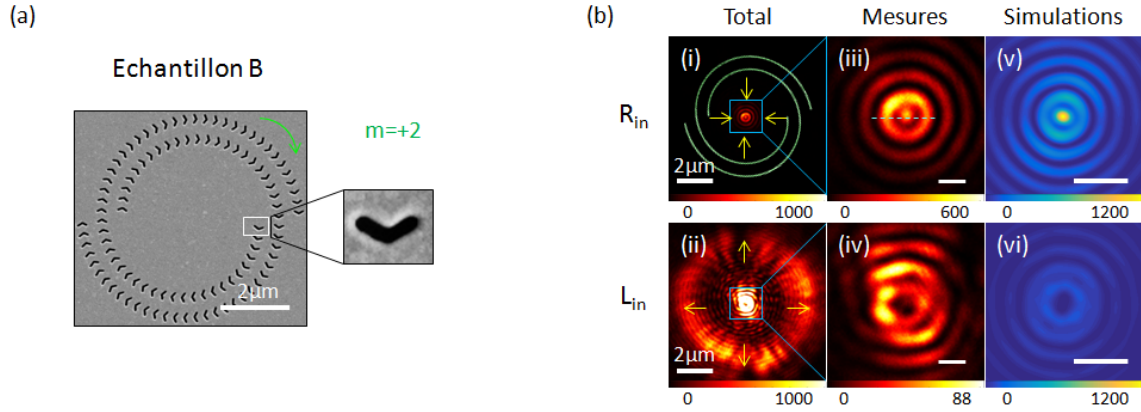


FIGURE 6.14 – (a) Image MEB de l'échantillon. (b) Mesures et simulations sans analyse de polarisation. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$  ou  $\mathbf{L}_{in}$ . Les flèches jaunes indiquent la direction de propagation des plasmons et la spirale verte indique la position des nanostructures. Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

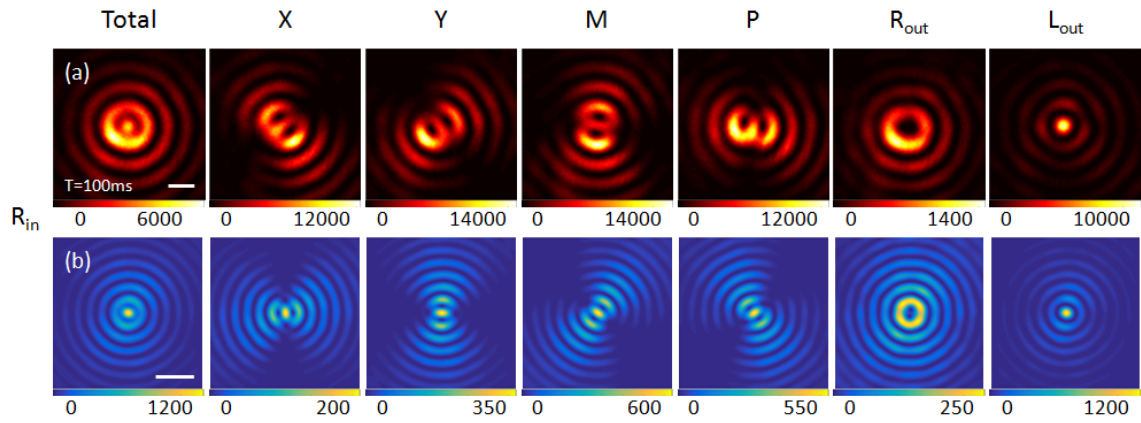


FIGURE 6.15 – Analyse polarimétrique des images LRM (a) expérimentales, (b) théoriques pour l'échantillon B. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

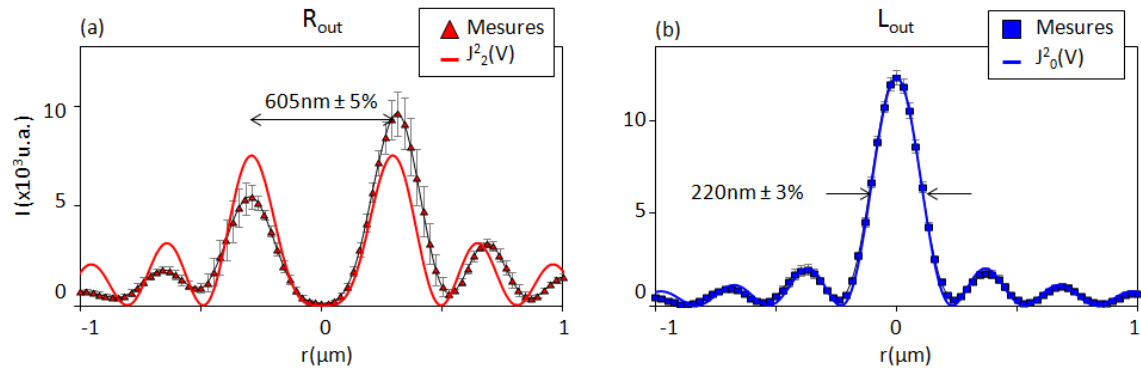


FIGURE 6.16 – Profils d'intensité analysés en polarisation (a)  $\mathbf{R}_{out}$  et (b)  $\mathbf{L}_{out}$ . Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$ .

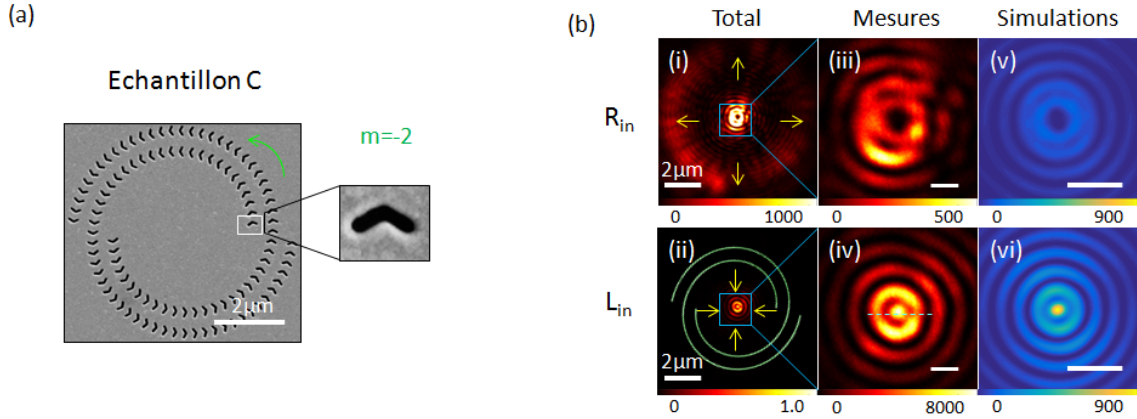


FIGURE 6.17 – (a) Image MEB de l'échantillon. (b) Mesures et simulations sans analyse de polarisation. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$  ou  $\mathbf{L}_{in}$ . Les flèches jaunes indiquent la direction de propagation des plasmons et la spirale verte indique la position des nanostructures. Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

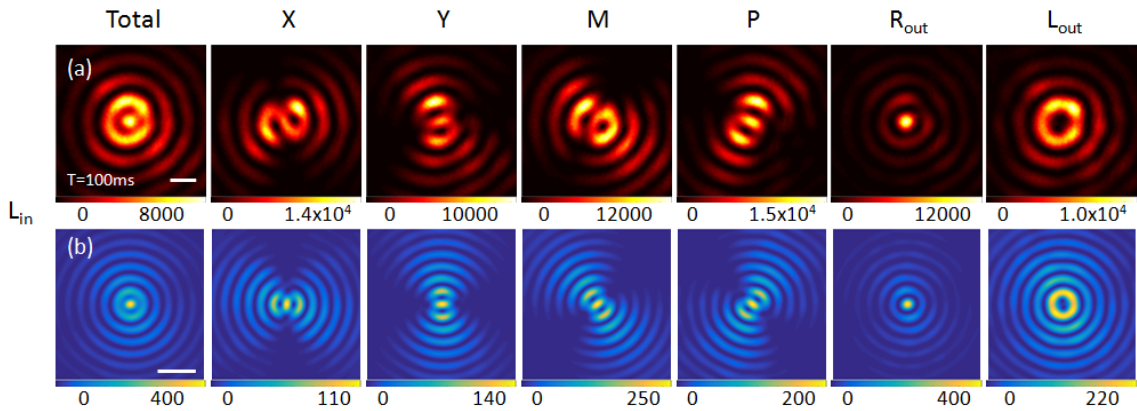


FIGURE 6.18 – Analyse polarimétrique des images LRM (a) expérimentales, (b) théoriques pour l'échantillon C. Polarisation incidente  $\mathbf{L}_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

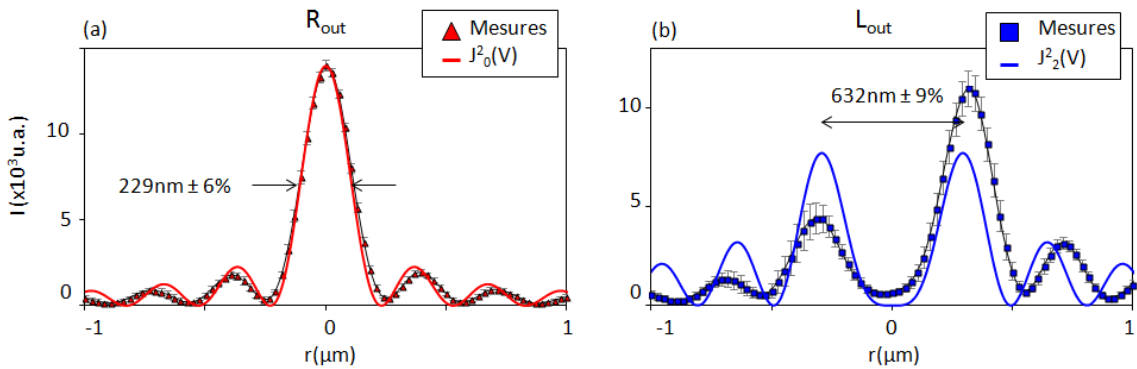


FIGURE 6.19 – Profils d'intensité analysés en polarisation (a)  $\mathbf{R}_{out}$  et (b)  $\mathbf{L}_{out}$ . Polarisation incidente  $\mathbf{L}_{in}$ .

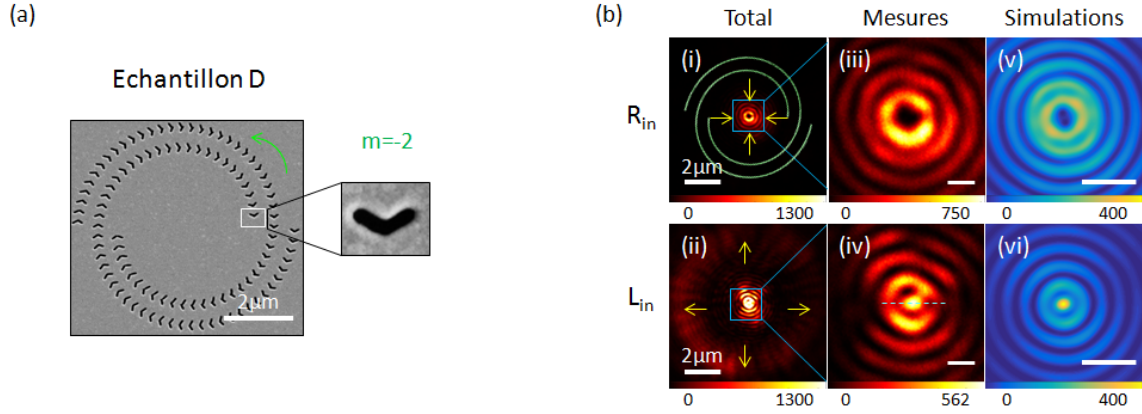


FIGURE 6.20 – (a) Image MEB de l'échantillon. (b) Mesures et simulations sans analyse de polarisation. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$  ou  $\mathbf{L}_{in}$ . Les flèches jaunes indiquent la direction de propagation des plasmons et la spirale verte indique la position des nanostructures. Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

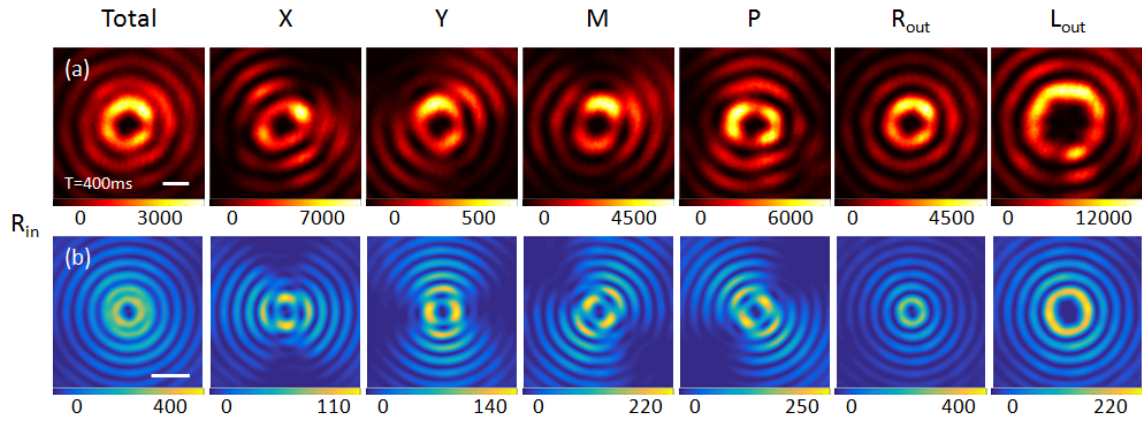


FIGURE 6.21 – Analyse polarimétrique des images LRM (a) expérimentales, (b) théoriques pour l'échantillon D. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

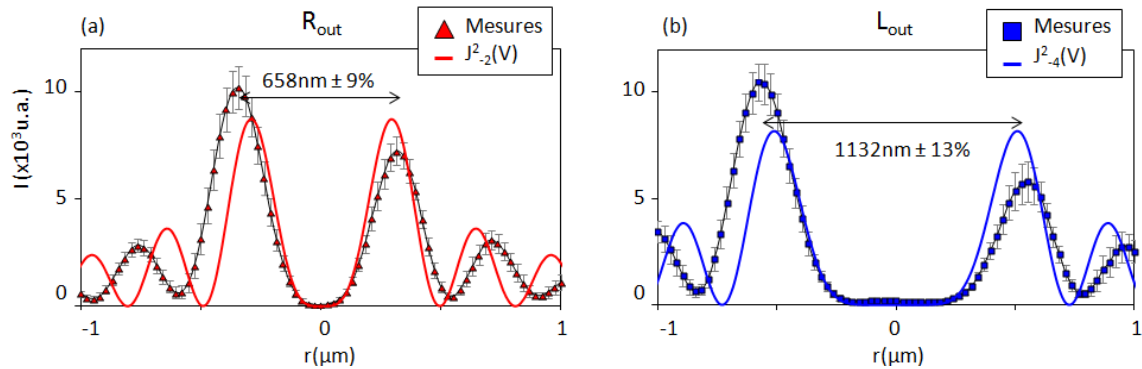


FIGURE 6.22 – Profils d'intensité analysés en polarisation (a)  $\mathbf{R}_{out}$  et (b)  $\mathbf{L}_{out}$ . Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$ .

En effet, bien que les échantillons A et C soient formés des mêmes nanostructures  $\Lambda$ , les spirales ont une orientation opposée :  $m < 0$  pour A et  $m > 0$  pour C . Cela entraîne une distribution d'intensité sous forme d'un maximum central pour A ou sous forme d'un anneau pour C. Cette asymétrie est due à la chiralité  $m$  de la spirale qui détermine l'état orbital des vortex selon la même règle de sélection que précédemment :  $l = m + s - s'$ .

Enfin, nous présentons sur les Fig. 6.12, 6.15, 6.18, 6.21, l'analyse en polarisation des modes contenus dans les vortex lorsque les plasmons convergent vers le centre de la structure (les données correspondant à la divergence des plasmons, vers l'extérieur de la PVL, sont disponibles en Annexes B). On constate tout d'abord que le contraste nous permet de vérifier un très bon accord avec les simulations. Nous distinguons aisément les lobes latéraux et cela même en polarisation linéaire. Les nano-ouvertures permettent de limiter la transmission directe du faisceau incident et de nettoyer le signal plasmonique utile de la lumière parasite [36]. Cet accord est analysé quantitativement en polarisation circulaire via les profils d'intensité présentés sur les Fig. 6.13, 6.16, 6.19, 6.22. L'allure des courbes mesurées ainsi que la taille des vortex s'accordent bien avec la théorie. Ainsi, en disposant ces nanostructures en  $V$  et  $\Lambda$  selon une géométrie spirale, nous acquérons un degré supplémentaire sur l'adressage des vortex, pour lesquels la concentration ne sera favorisée que pour un spin incident donné.

Par exemple, analysons plus en détail la réponse de l'échantillon B. Ce dernier concentre les plasmons sous incidence  $\mathbf{R}_{in}$  et est décrit par :

$$I_{-1}^B \propto |C_{-1}^V|^2 (J_2^2(V) + J_0^2(V)), \quad (6.15)$$

$$I_1^B \propto |C_1^V|^2 (J_2^2(V) + J_4^2(V)), \quad (6.16)$$

où  $C_{+1}^V \ll C_{-1}^V$ . Les mesures sur les bases  $\mathbf{R}_{out}$  et  $\mathbf{L}_{out}$  (Fig. 6.15) concordent effectivement avec les fonctions de Bessel  $J_0^2(V)$  et  $J_4^2(V)$ . Précisons que pour prédire intuitivement la réponse de cette PVL, nous avons négligé la contribution du dipôle mineur. Or le signal mesuré sous incidence  $s = +1$  n'est pas totalement nul car nous devons tenir compte du facteur de forme  $\beta$ . Cela est pris en compte dans nos simulations qui reproduisent avec fidélité l'allure des diagrammes expérimentaux.

Par ailleurs, si on souhaite réaliser une focalisation, non pas sur un maximum d'intensité, mais sur un mode singulier, nous pouvons exciter la spirale de charge opposée  $m = -2$ , tout en gardant l'orientation des  $V$ , ce qui correspond à l'échantillon D. Le vortex ainsi produit est caractérisé par des anneaux concentriques intenses et bien définis (Fig. 6.21(i)), décrits par :  $I_{-1}^D \propto |C_{-1}^V|^2 (J_2^2(V) + J_4^2(V))$ .

Enfin, sur la Fig. 6.18, nous présentons la réponse de l'échantillon C, c'est à dire l'énantiomère de B. L'énantiomère correspond à une orientation des nano-ouvertures et une charge géométrique contraires à celles de B, soit à une PVL composée de  $\Lambda$  disposés selon une spirale  $m = -2$ . Nous trouvons une réponse diamétralement opposée à celle l'échantillon B avec des plasmons qui divergent pour  $\mathbf{R}_{in}$  dont la

distribution spatiale résiduelle est décrite par la somme de  $J_2^2(V)$  et  $J_4^2(V)$ .

Finalement, cette étude démontre que les métaspires permettent d'adresser simultanément la partie orbitale et l'intensité des vortex plasmoniques à travers le spin incident.

## 6.4 Conclusion et perspectives

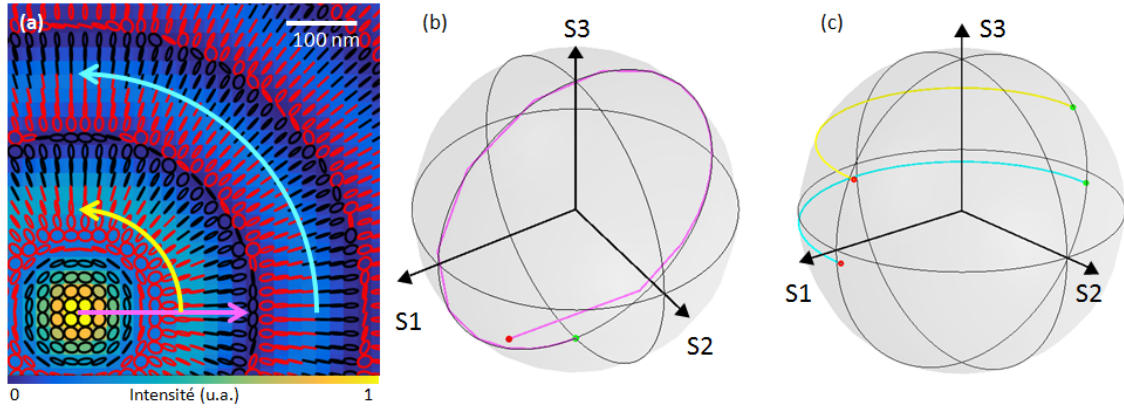


FIGURE 6.23 – (a) Simulations des ellipses de polarisation pour une lentille plasmonique circulaire éclairée avec une polarisation circulaire  $\mathbf{R}_{in}$ . (b) Sphère de Poincaré traçant l'évolution de l'état de polarisation selon une trajectoire radiale et (c) azimutale, comme indiquée sur (a) par les flèches rose, jaune et bleu, respectivement. Les points verts et rouges marquent respectivement la position de départ et de fin de la trajectoire.

Nous avons montré que l'imagerie LRM est un outil puissant pour l'étude quantitative et polarimétrique des vortex plasmoniques. D'une part, nous avons mis en évidence, de manière théorique puis expérimentale, l'influence de la chiralité des lentilles de vortex plasmoniques sur le couplage spin-orbite. Un examen quantitatif des cartographies de polarisation a montré que le profil radial des vortex suivait effectivement une règle de sélection OAM, conditionnée par la charge géométrique de la spirale et l'état de polarisation incident. D'autre part, la compréhension de ces PVL simples nous a permis de prédire la réponse plus complexe des métaspires. Nous avons ainsi ajouté un degré de chiralité supplémentaire aux PVL chirales en les structurant avec des nano-ouvertures en forme de  $V$  ou  $\Lambda$ . Ce travail a permis de montrer que les métaspires offrent la capacité de manipuler de manière conjointe l'intensité et l'état orbital du vortex plasmonique par le biais de la polarisation incidente, ce qui pourrait ouvrir des perspectives intéressantes dans la nano-manipulation optique.

Durant ce projet, nous nous sommes concentrés sur l'influence de la chiralité sur les singularités de phase du champ plasmonique. Les résultats obtenus suggèrent que l'étude pourrait être étendue à d'autres types de singularités telles que les vortex

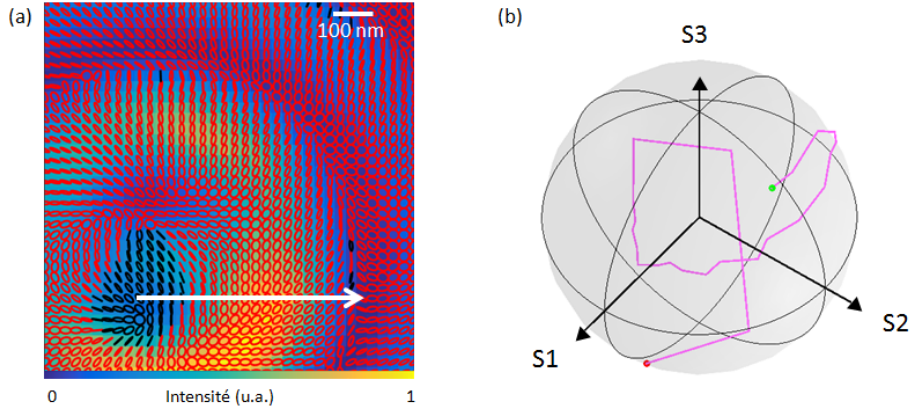


FIGURE 6.24 – (a) Reconstruction des ellipses de polarisation à partir des données expérimentales pour une lentille plasmonique circulaire, éclairée avec une polarisation circulaire  $\mathbf{R}_{in}$ . (b) Sphère de Poincaré traçant l'évolution de l'état de polarisation selon une trajectoire radiale comme indiquée sur (a) par la flèche blanche. Les points verts et rouges marquent respectivement la position de départ et de fin de la trajectoire.

de polarisation [119]. En effet, on pourrait mettre à profit notre technique pour reconstruire les variations spatiales du vecteur polarisation associé aux plasmons de surface, à l'étude de la chiralité sur les *L-lines* et les *C-points*, c'est à dire des zones de l'espace où le sens de rotation et l'orientation de l'ellipse de polarisation ne sont pas définis ou varient subitement. Ce projet est actuellement en cours. Pour explorer ce nouveau champ d'étude, j'ai mis oeuvre une simulation permettant de visualiser sur la sphère de Poincaré l'évolution de la polarisation des vortex plasmoniques sur le long d'une trajectoire radiale ou azimutale. Les singularités de polarisations se situent au niveau des pôles ( $S_1 = S_2 = 0$ ) ou à l'équateur ( $S_3 = 0$ ). Les résultats préliminaires pour une PVL achirale sont présentées sur la Fig. 6.23. On constate par exemple que lorsqu'on se déplace selon une trajectoire radiale sur la Fig. 6.23(a), le champ balaye le méridien  $S_2 = 0$  et passe par une multitude d'états de polarisation. En revanche, seule l'orientation de l'ellipse est modifiée lors d'un déplacement selon l'azimut et l'état de polarisation évolue le long d'un parallèle sur la sphère de Poincaré.

J'ai ensuite testé cette étude sur les résultats mesurés sur la PVL circulaire. D'après les intensités enregistrées sur chaque état de polarisation, j'ai calculé les paramètres de Stokes pour reconstruire les ellipses de polarisation (Fig. 6.24(a)). Sur la Fig. 6.24 (b), nous avons tracé l'évolution de la polarisation sur la sphère de Poincaré selon une trajectoire radiale. On constate que celle-ci diffère fortement des prédictions théoriques de la Fig. 6.23(b) : la polarisation ne suit pas une trajectoire dans un plan défini par le méridien  $S_2 = 0$  mais évolue suivant un chemin complexe et selon les trois directions de l'espace sur la sphère de Poincaré. Nous attribuons ces disparités aux erreurs expérimentales provenant de la précision des polariseurs et aux erreurs de focalisation et d'alignement, qui nécessitent donc d'être corrigées pour améliorer

la précision des mesures. L'idée serait alors d'appliquer cette analyse aux données expérimentales obtenues sur les PVL chirales. Ce nouveau projet de recherche laisse entrevoir des pistes intéressantes pour la génération de vortex vectoriels au moyen de structures plasmoniques chirales [120, 121].

# Annexe A

## Profils d'intensité des PVL chirales

Nous présentons dans cette annexe, les profils d'intensité correspondant au PVL  $m = +1, -2$  et  $-3$ , à partir desquels nous avons mesuré les diamètres des vortex mentionnés dans le corps du texte.

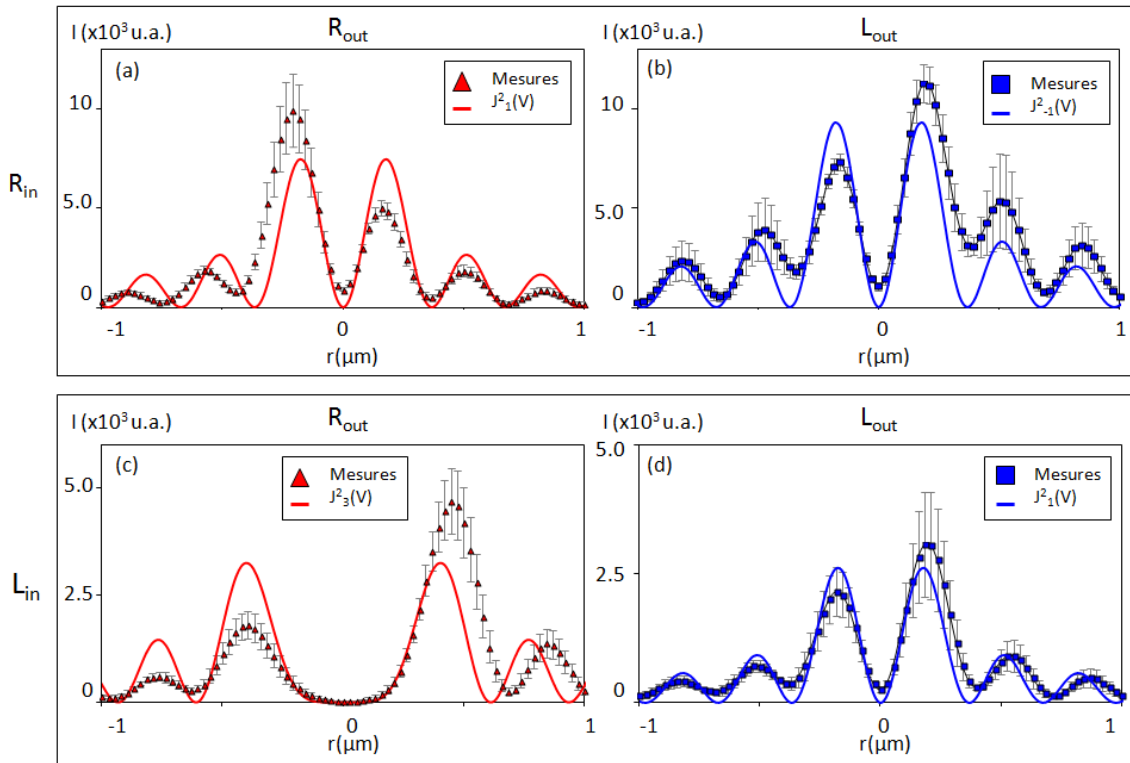


FIGURE A.1 – Profils d'intensité mesurés et théoriques ( $V = k_{sp}r$ ) réalisés sur la PVL  $m = 1$ .



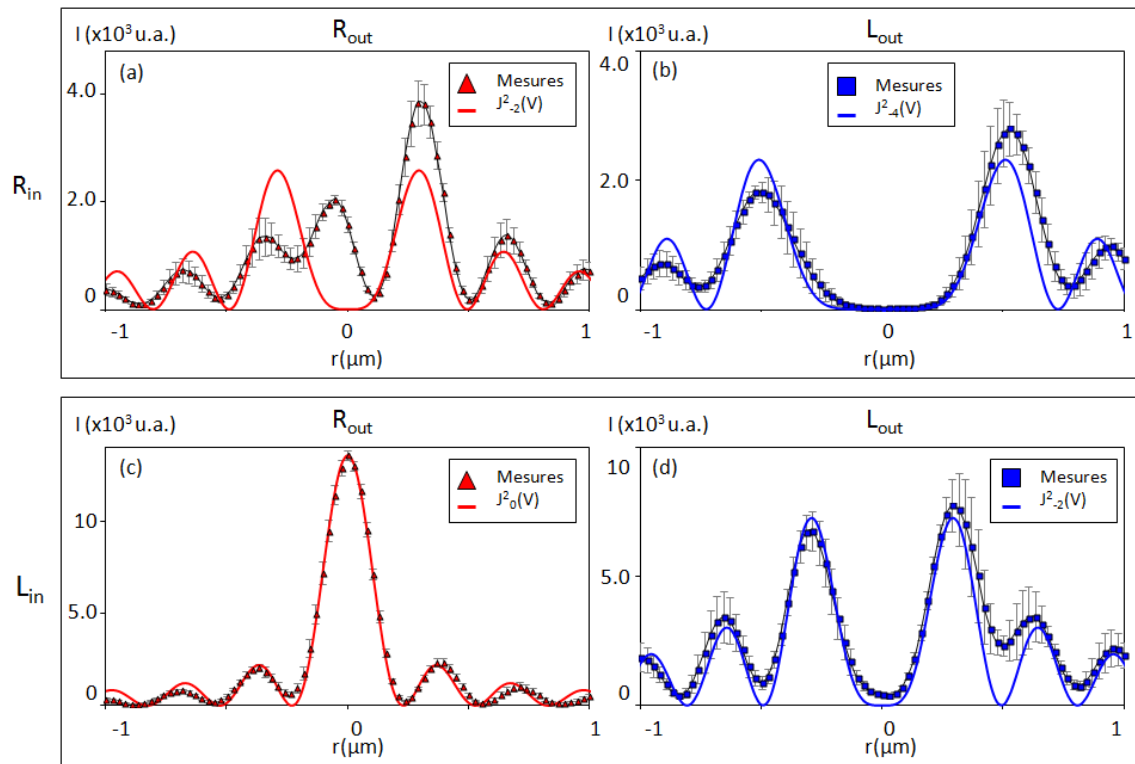


FIGURE A.2 – Profils d'intensité mesurés et théoriques ( $V = k_{sp}r$ ) réalisés sur la PVL  $m = -2$ .

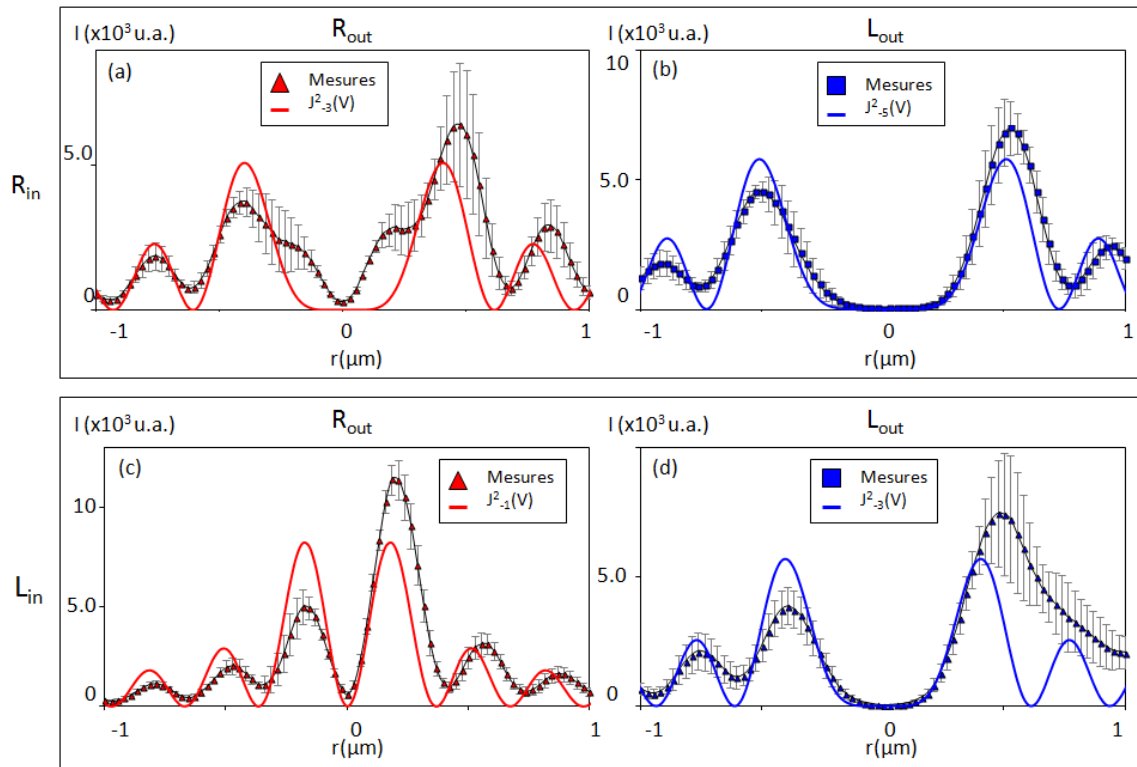


FIGURE A.3 – Profils d'intensité mesurés et théoriques ( $V = k_{sp}r$ ) réalisés sur la PVL  $m = -3$ .



## Annexe B

# Métaspirales pour un faisceau plasmonique divergeant

Nous présentons dans cette annexe les mesures réalisées sur les échantillons A, B, C et D lorsque les plasmons sont dirigés vers l'extérieur de la PVL. L'intensité au centre est donc beaucoup plus faible que dans le cas d'une directionnalité vers le centre, ce qui nécessite un temps d'intégration plus élevé. Dans cette configuration le signal est très faible et la structure des vortex est moins bien définie. Nous retrouvons cependant un bon accord entre la théorie et l'expérience.

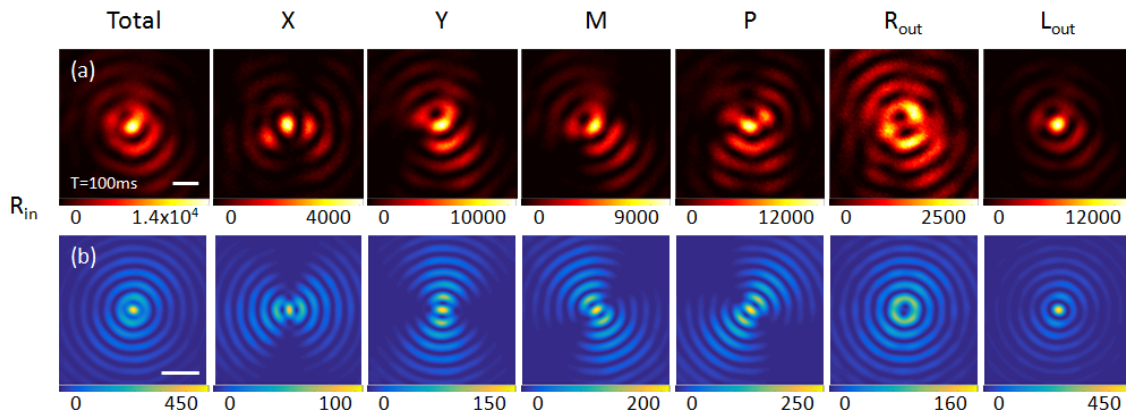


FIGURE B.1 – Analyse polarimétrique des images LRM (a) expérimentales, (b) théoriques pour l'échantillon A. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

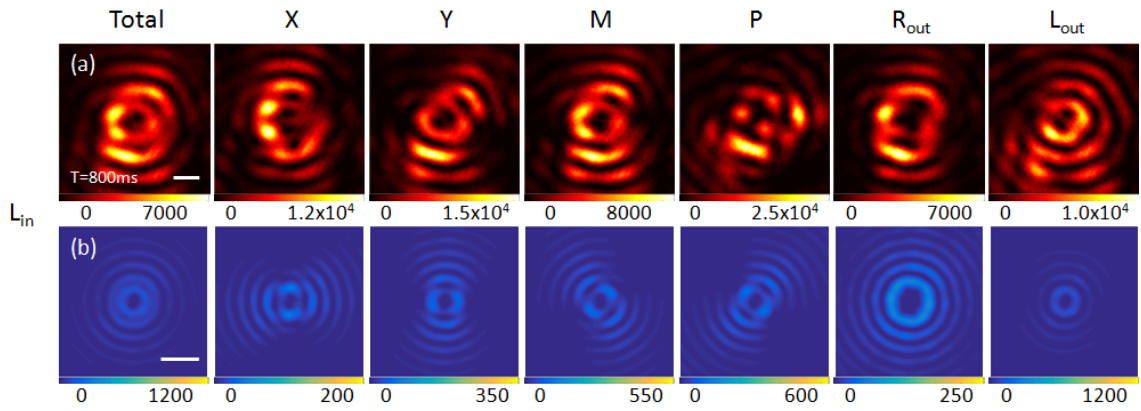


FIGURE B.2 – Analyse polarimétrique des images LRM (a) expérimentales, (b) théoriques pour l'échantillon B. Polarisation incidente  $\mathbf{L}_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

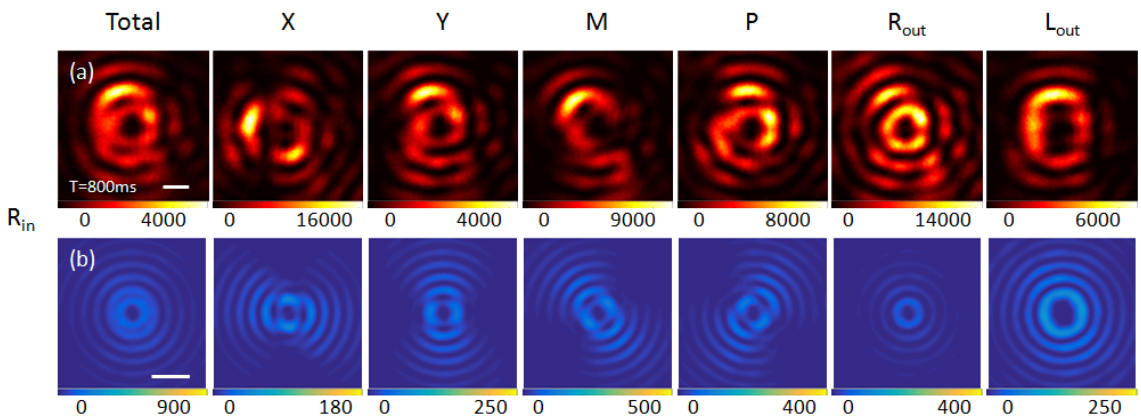


FIGURE B.3 – Analyse polarimétrique des images LRM (a) expérimentales, (b) théoriques pour l'échantillon C. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

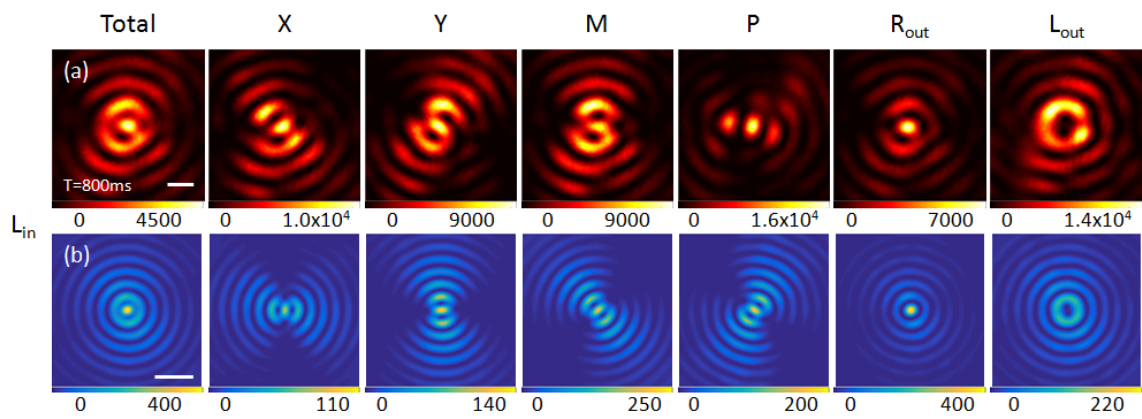


FIGURE B.4 – Analyse polarimétrique des images LRM (a) expérimentales, (b) théoriques pour l'échantillon D. Polarisation incidente  $L_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).



## Annexe C

# Génération de vortex plasmoniques par des métaspiresales $|m| = 1$

Cette annexe est consacrée à la caractérisation des métaspiresales  $|m| = 1$ . Comme discuté dans le corps du manuscrit, celles-ci se présentent sous quatre formes, qui se distinguent par le sens de rotation de la spirale  $\pm 1$  et l'orientation des nanostructures suivant  $\Lambda$  ou  $V$ . Chacune de ces structures est excitée avec une polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$  et  $\mathbf{L}_{in}$ . Le signal plasmonique résultant est ensuite analysé sur toutes les bases de polarisation.

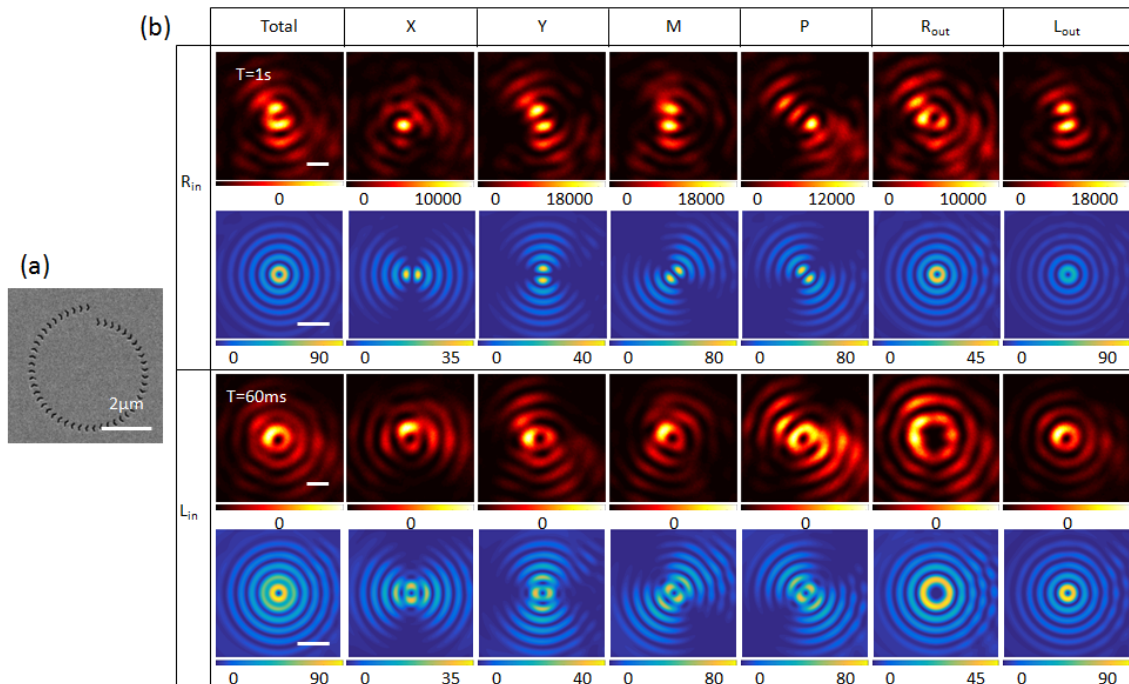


FIGURE C.1 – (a) Images MEB de l'échantillon. (b) Analyse polarimétrique des images LRM expérimentales et théoriques. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$  et  $\mathbf{L}_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).



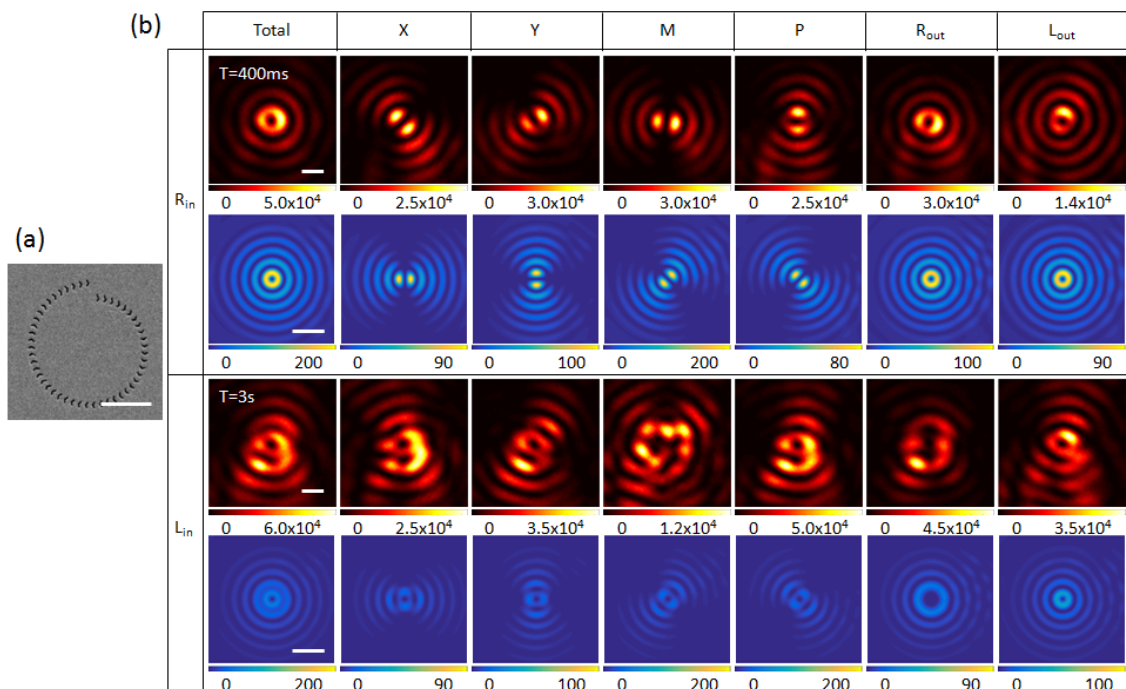


FIGURE C.2 – (a) Images MEB de l'échantillon. (b) Analyse polarimétrique des images LRM expérimentales et théoriques. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$  et  $\mathbf{L}_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

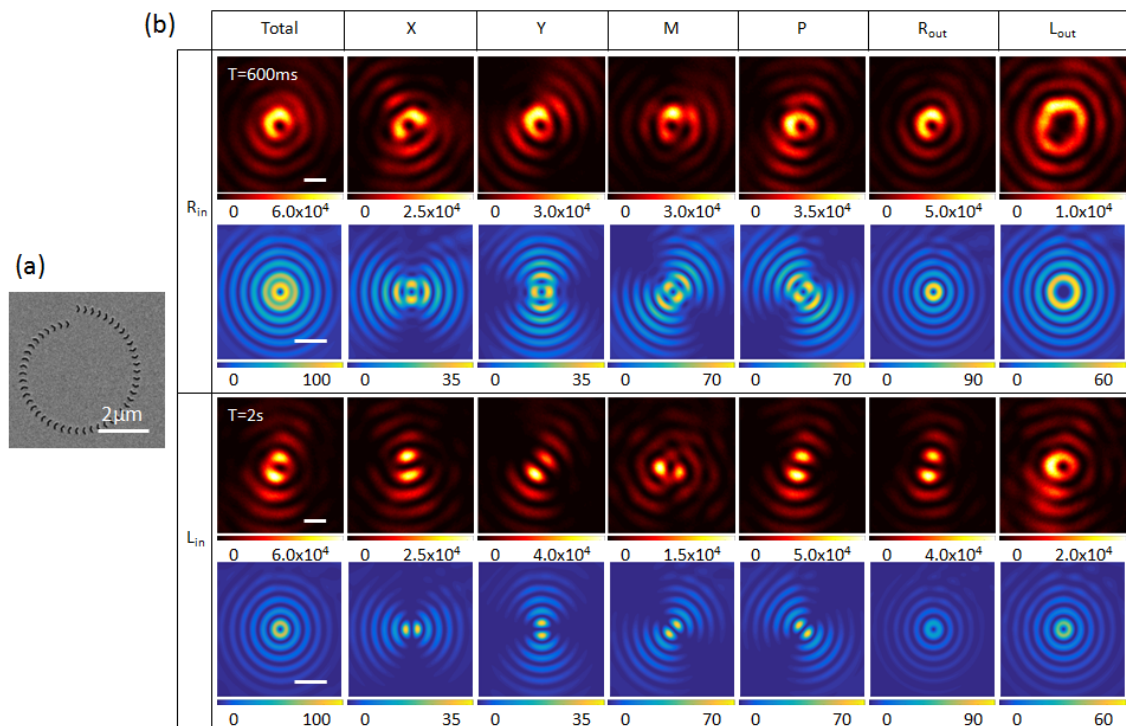


FIGURE C.3 – (a) Images MEB de l'échantillon. (b) Analyse polarimétrique des images LRM expérimentales et théoriques. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$  et  $\mathbf{L}_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

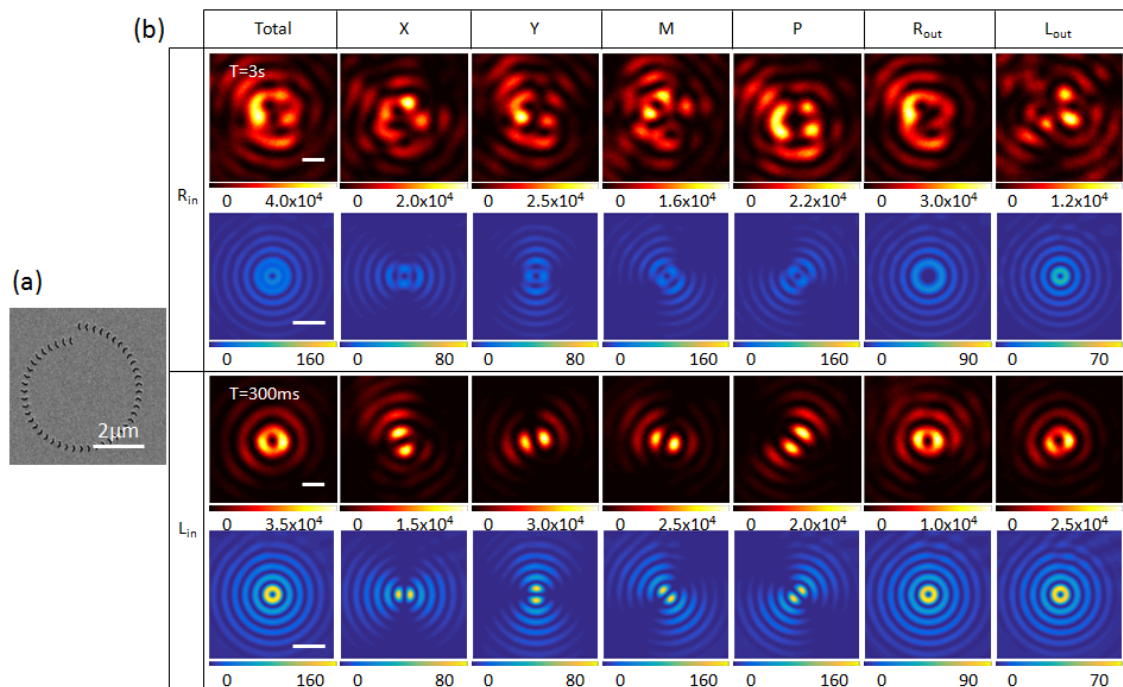


FIGURE C.4 – (a) Images MEB de l'échantillon. (b) Analyse polarimétrique des images LRM expérimentales et théoriques. Polarisation incidente  $\mathbf{R}_{in}$  et  $\mathbf{L}_{in}$ . Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

# Chapitre 7

## LDOS optique chirale dans des cavités plasmoniques spirales

### Sommaire

---

<b>7.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>137</b>
<b>7.2</b>	<b>Concept de densité locale d'états optique</b>	<b>139</b>
7.2.1	Notion de LDOS	139
7.2.2	Techniques optiques pour la mesure de la LDOS	141
<b>7.3</b>	<b>Description de l'expérience</b>	<b>143</b>
<b>7.4</b>	<b>Mesure de la LDOS partielle planaire <math>\delta\rho_{\parallel}</math></b>	<b>147</b>
7.4.1	Orientation du dipôle source	147
7.4.2	Cavité plasmonique chirale	148
7.4.3	Cavité plasmonique circulaire	152
<b>7.5</b>	<b>Mesure de la LDOS partielle normale <math>\delta\rho_{\perp}</math></b>	<b>154</b>
7.5.1	Caractérisation de la sonde active	154
7.5.2	Cartographie de la LDOS partielle	155
<b>7.6</b>	<b>Analyse polarimétrique de la LDOS partielle</b>	<b>157</b>
7.6.1	Diagramme de polarisation LDOS	158
7.6.2	Polarisation locale de LDOS	161
<b>7.7</b>	<b>Densité et flux de chiralité de LDOS</b>	<b>162</b>
7.7.1	Notion de densité et de flux de chiralité	163
7.7.2	Mesure de la chiralité en champ lointain	163
7.7.3	Chiralité en champ proche	165
7.7.4	Onde plasmonique planaire rétro-réfléchie sur la source dipolaire	168
<b>7.8</b>	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>170</b>

---

### 7.1 Introduction

L'amélioration des techniques de spectroscopie chirale reste une tâche difficile pour l'industrie pharmaceutique et la science biomoléculaire. La discrimination énantiomérique repose sur le fait que les molécules chirales interagissent différemment avec

la lumière polarisée circulairement gauche et droite. Cet effet est connu sous le nom de dichroïsme circulaire (CD). Cependant, leur réponse chiroptique tend à être très faible. L'amélioration des interactions entre la lumière et les molécules chirales fait donc l'objet d'intenses recherches [122, 83, 123]. En 2010, Hendry et al. ont notamment mesuré un accroissement de la réponse CD de protéines adsorbées dans des nanostructures chirales métalliques [60]. Plus précisément, ils rapportent une différence entre les indices effectifs de réfraction des échantillons chiraux  $10^6$  fois supérieure à celle obtenue en polarimétrie classique. Ces possibilités suscitent donc un grand intérêt dans le domaine de la plasmonique chirale [14, 124, 125, 3]. Cette sensibilité accrue repose notamment sur des champs électromagnétiques dit "super-chiraux" pouvant être générés au voisinage de structures plasmoniques chirales. En effet, au-delà d'une sensibilité à la polarisation circulaire, une réponse CD renforcée a été démontrée avec des faisceaux fortement chiraux, appelés lumière superchirale, ce qui a notamment motivé l'étude et la génération de champs électromagnétiques sculptés [126, 127, 128].

Pour décrire ces champs de plus en plus complexes et fortement chiraux, Tang et al. ont récemment proposé d'utiliser la densité de chiralité  $\chi$  et le flux de chiralité  $\Phi$ , comme observables de la densité locale de chiralité optique [126]. Initialement introduites par Lipkin [129], plusieurs études récentes portant sur la signification physique de ces quantités ont révélé un lien entre ces grandeurs avec le taux différentiel d'excitation de molécules chirales et les forces chirales [130, 131, 101]. Parallèlement, S.J. Yoo et Q.-H. Park ont récemment étendu le facteur de Purcell au couplage entre la lumière avec des molécules chirales [132] :  $F_C = \frac{3}{4\pi^2} \frac{\lambda_0^3}{n} \frac{Q}{V_C}$  où  $\lambda_0$  est la longueur d'onde de résonance et  $n$  l'indice de réfraction. Les paramètres de cavité sont décrits par le facteur de qualité  $Q$  et le volume modal chiral  $V_C$ . Ils représentent respectivement le confinement temporel et spatial de l'hélicité de la lumière. Ainsi, le facteur de Purcell chiral  $F_C$  décrit la différence entre le taux d'émission spontanée d'une molécule chirale lorsqu'elle est couplée aux polarisations circulaires droite et gauche de la cavité.

Dans ce contexte, l'objectif de ce chapitre est de connecter les figures de mérite de la chiralité optique au concept de densité locale d'états optique (*Local Density Of States*, LDOS). Par définition, la LDOS fournit une description électromagnétique du milieu environnant pour caractériser les modes optiques d'émission disponibles pour un émetteur à une position donnée [133, 134, 135]. Alors que le facteur de Purcell chiral, ainsi que de nombreux travaux rapportés dans la littérature sur la LDOS, se concentrent principalement sur la mesure du taux de décroissance des émetteurs [132], une compréhension globale des interactions lumière-matière implique également d'examiner la LDOS selon des critères de directivité et de polarisation [136, 137]. Ainsi, notre travail repose sur une analyse polarimétrique de la LDOS. Il a pour but de révéler le comportement chiral des modes singuliers associés à des cavités plasmoniques spirales. Les structures plasmoniques spirales ont notamment reçu une attention particulières [18, 138, 139] en raison de leur capacité à contrôler des propriétés d'émission de sources quantiques telles que le spin et la

directivité [140, 110] et, comme nous l'avons vu, à générer des vortex plasmoniques de moment angulaire orbital (OAM) donné [138, 115]. Le contrôle de ce degré de liberté supplémentaire devrait, par ailleurs, trouver des applications intéressantes dans le piégeage optique [114] et les systèmes de communication optiques [141, 26].

Au moyen d'un SNOM en mode illumination, nous montrons d'une part que les composantes planaires et normales de la LDOS partielle sont sensibles à la polarisation circulaire et donnent lieu à des vortex optiques. Pour cela, la LDOS est mise en évidence par une pointe SNOM classique à ouverture, puis à l'aide d'une sonde quantique constituée d'un nanodiamant contenant des centres NV. L'utilisation d'un émetteur quantique présente notamment des perspectives intéressantes pour la manipulation des propriétés d'émission de source à photon unique. D'autre part, après avoir établi le lien entre les paramètres de chiralité optique avec le degré de polarisation circulaire, nous caractérisons la densité et le flux de chiralité des modes propagatifs de la LDOS. Par analogie avec le théorème de Poynting, ces quantités lorsqu'elles sont appliquées à la LDOS, décrivent la capacité d'une source à "dissiper" la chiralité à une position donnée. Enfin, en utilisant le théorème de réciprocité [135, 142], nous discuterons des propriétés chirales du champ proche plasmonique [127]. Nous montrerons que des informations cruciales peuvent être extraites de nos mesures de LDOS radiatives. En effet, sonder ces grandeurs en champ proche constitue un enjeu majeur notamment pour l'optimisation des couplages entre la lumière chirale et les molécules chirales [143, 144, 145]. La méthode proposée pour la caractérisation de la chiralité de la LDOS pourrait notamment être utile pour la génération de lumière superchirale et des forces optiques dans la conception de capteurs de chiralité performant.

## 7.2 Concept de densité locale d'états optique

Après une brève introduction sur les concepts généraux de la densité locale d'états optique (LDOS), nous allons discuter de façon non exhaustive des travaux majeurs existant dans la littérature se rapportant en particulier à la méthode SNOM pour sonder la LDOS.

### 7.2.1 Notion de LDOS

En 1970, Drexhage a montré que les propriétés d'émission d'une source peuvent fortement varier selon sa disposition dans le milieu dans lequel elle est placée [146]. En particulier, ces travaux montrent qu'une surface métallique placée au voisinage de l'émetteur peut modifier sa distribution angulaire d'émission. Son taux de relaxation dépend également de sa distance et de son orientation par rapport à cette surface [12]. Si on considère un système simplifié à deux niveaux (Fig. 7.1), la probabilité de trouver le dipôle dans l'état excité est donnée par  $P(t) \propto e^{-t/\tau}$ , où  $\tau = 1/\Gamma$  est le taux d'émission spontanée et  $\Gamma$  le taux de transition de l'état initial à l'état final. Dans ce modèle simple à 2 niveaux,  $\Gamma$  décrit les transitions radiatives du système. D'après la règle d'or de Fermi, la modification de la durée de vie de l'émetteur quantique dans un environnement donné est décrite par  $\Gamma/\Gamma_0$  (où  $\Gamma_0$  représente le

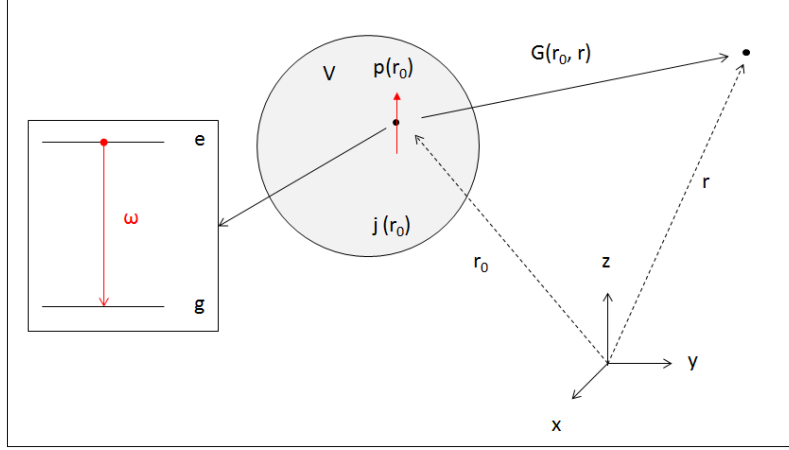


FIGURE 7.1 – Champ rayonné par un dipôle.

taux de relaxation dans le vide) et :

$$\Gamma = \frac{\pi\omega}{3\hbar} |\mathbf{p}_{eg}|^2 \rho_p(\mathbf{r}_0, \omega), \quad (7.1)$$

avec  $\mathbf{r}_0$  la position du dipôle,  $\omega$  sa fréquence d'émission et  $\mathbf{p}_{eg}$  l'élément de matrice de transition (système d'unité de Lorentz). La LDOS partielle, notée  $\rho_p(\mathbf{r}_0, \omega)$ , caractérise les canaux disponibles d'émission (radiatifs et non radiatifs) pour un dipôle d'orientation  $\hat{\mathbf{p}} = \mathbf{p}/|\mathbf{p}| = p_x\hat{x} + p_y\hat{y} + p_z\hat{z}$  et positionné à  $\mathbf{r}_0$ . Elle est donnée par :

$$\rho_p(\mathbf{r}_0, \omega) = \frac{6\omega}{\pi c^2} \Im\{\hat{\mathbf{p}} \cdot G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega) \cdot \hat{\mathbf{p}}\}, \quad (7.2)$$

où  $G$  désigne la fonction de Green. La somme sur toutes les orientations du dipôle permet de définir la LDOS totale, notée  $\rho_{tot}(\mathbf{r}_0, \omega)$  :

$$\rho_{tot}(\mathbf{r}_0, \omega) = \rho_{p_x}(\mathbf{r}_0, \omega) + \rho_{p_y}(\mathbf{r}_0, \omega) + \rho_{p_z}(\mathbf{r}_0, \omega). \quad (7.3)$$

A la différence de la densité d'états optique (*Density of States*, DOS) qui détermine la probabilité de détecter la puissance émise à une fréquence  $\omega$  soit  $\rho(\omega) = \sum_n \delta(\omega_n - \omega)$ , la LDOS tient compte de la position de la source  $\mathbf{r}_0$  :  $\rho_p(\mathbf{r}_0, \omega) = \sum_n |\mathbf{E}_n(\mathbf{r}_0)|^2 \delta(\omega_n - \omega)$ . Ainsi, les canaux possibles d'émission sont pondérés par la façon dont l'orientation et la position du dipôle source peuvent s'accorder aux modes disponibles dans cet environnement.

Nous rappelons que la LDOS décrit aussi la modification de l'intensité lumineuse due au milieu environnant. En régime monochromatique, la puissance rayonnée par un émetteur  $P = \hbar\omega\Gamma$  s'écrit :

$$P = \frac{2\omega^3}{c^2} |\mathbf{p}|^2 \Im\{\hat{\mathbf{p}} \cdot G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega) \cdot \hat{\mathbf{p}}\} = \frac{\pi\omega^2}{3} |\mathbf{p}|^2 \rho_p(\mathbf{r}_0, \omega). \quad (7.4)$$

Cette propriété sera notamment exploitée pour relier nos mesures d'intensité aux cartographies de LDOS optiques.

En résumé, les Eq. 7.1 et 7.2 mettent en valeur que l'émission dépend non seulement de la source ( $|\mathbf{p}|^2$ ) mais qu'elle peut aussi être façonnée par le système optique dans lequel elle est placée ( $\rho_p(\mathbf{r}_0, \omega)$ ). La LDOS décrit l'influence de l'environnement sur les propriétés d'émission selon la position et l'orientation du dipôle comme suit :

$$\frac{\Gamma}{\Gamma_0} = \frac{P}{P_0} = \frac{6\pi c}{\omega} \Im\{\hat{\mathbf{p}} \cdot G(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega) \cdot \hat{\mathbf{p}}\} = \frac{\pi^2 c^3}{\omega^2} \rho_p, \quad (7.5)$$

où  $\Gamma_0 = \frac{\omega^3}{\pi^2 \hbar c^3} |\mathbf{p}_{eg}|^2$  et  $P_0 = \frac{\omega^4}{3\pi c^3} |\mathbf{p}|^2$  sont respectivement les taux de relaxation et la puissance cédée par le dipôle dans le vide.

Précisons que pour décrire complètement l'interaction d'un dipôle avec son milieu, le couplage dipolaire magnétique (à la fréquence  $\omega$ ) doit, en toute rigueur, être pris en compte dans la LDOS. Par exemple, Aigouy, et al. rapporte expérimentalement la mesure simultanée des transitions électriques et magnétiques à l'aide d'une pointe SNOM fonctionnalisée avec un nanocristal de  $Eu^{3+}$  [147]. De plus, la LDOS, qui décrit les interactions radiatives et non radiatives avec le milieu, doit être sommée sur toutes les directions du dipôle. Dans le cadre de ce travail, nous nous intéresserons uniquement à la distribution spatiale des modes radiatifs. La LDOS sera mesurée dans le champ lointain, pour une orientation spécifique du dipôle et nous limiterons notre étude à la contribution dipolaire électrique de sorte que  $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$  fera référence à la contribution dipolaire électrique.

## 7.2.2 Techniques optiques pour la mesure de la LDOS

Depuis les travaux de Drexhage, de nombreuses études ont été consacrées au contrôle de la LDOS via des couplages plasmoniques. Nous avons vu que la mesure de la LDOS nécessite de pouvoir sonder le système optique à l'aide une source dipolaire. Parmi les techniques classiques rapportées dans la littérature, la plupart reposent sur des méthodes de microscopie en champ proche pour sonder la LDOS optique. En 2000, Dereux, et al. montrent théoriquement que les cartographies obtenues par SNOM permettent de remonter aux propriétés fondamentales associées à la LDOS optique [150, 133]. En particulier, le dipôle source induit par une sonde SNOM en mode illumination offre la possibilité de caractériser la LDOS partielle. En 2002, Chicanne, et al. [134] en réalisent la démonstration expérimentale et cartographient la LDOS partielle d'une structure, composée de nanoparticules disposées en enclos, grâce à un SNOM utilisé en champ sombre comme illustré sur la Fig. 7.2(a-b). La polarisation du faisceau laser injecté dans la sonde SNOM est alignée selon  $\hat{x}$  (respectivement  $\hat{y}$ ) afin de mesurer la LDOS partielle  $\rho_x$  (resp.  $\rho_y$ ). Combinées avec une analyse polarimétrique, nos expériences s'appuient sur cette approche expérimentale pour révéler les effets de la chiralité d'une cavité sur la LDOS partielle.

Comme discuté précédemment, la LDOS totale peut être déterminée en mesurant le temps de vie de l'émetteur selon l'Eq. 7.1. On peut distinguer deux techniques basées sur cette approche. Une première méthode consiste à disperser des molécules fluorescentes sur une surface puis à scanner une structure plasmonique placée ou



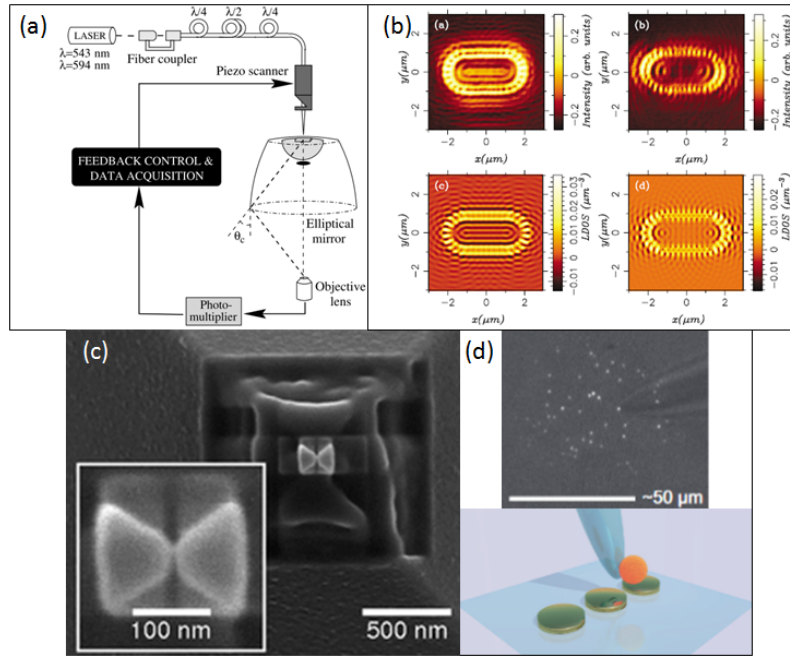


FIGURE 7.2 – (a) Montage optique SNOM à ouverture (Tirée de [134]). (b) Cartes de LDOS mesurées (ligne supérieure) et théoriques (ligne inférieure). (c) Antenne gravée au sommet d’une pointe AFM (Tirée de [148]). (d) Image supérieure : fluorescence d’une bille greffée au sommet d’une pointe AFM (à droite). Image inférieure : vue d’artiste d’une sonde active sondant le champ proche de nanoantennes d’or. (Tirée de [149]).

gravée à l’extrémité d’une sonde AFM ou SNOM [148] (Fig. 7.2(c)). Les molécules sont alors excitées avec un laser pulsé pour en déduire le temps de vie, soit le délai entre l’excitation et la fluorescence. Cette technique est toutefois limitée à une mesure statistique de la LDOS et dans le type structure plasmonique qu’il est possible de positionner sur la sonde. Une deuxième approche consiste à greffer une molécule fluorescente sur une sonde SNOM puis à balayer le champ proche des échantillons. Cette technique permet, par exemple, de caractériser l’exaltation de la fluorescence de molécules uniques par le biais de nanoparticules métalliques [151, 135, 142, 149] (Fig. 7.2(d)).

Enfin, mentionnons que la LDOS peut également être sondée par des techniques de microscopies électroniques telles que la spectroscopie des pertes d’énergie électronique (*Electron Energy Loss Spectroscopy*, EELS) et la cathodoluminescence (CL). La méthode EELS est basée sur l’illumination de l’échantillon par un faisceau d’électrons et la LDOS est déduite à partir de la diffusion élastique et inélastique des électrons résultant [136, 152]. Quant à la méthode CL, elle caractérise l’onde électromagnétique rayonnée par un échantillon excité par un faisceau d’électron [153]. Dans le cadre de la chiralité optique, nous pouvons mentionner les travaux du groupe de Fang qui emploient cette dernière technique pour étudier le comportement chiral du signal CL dans des heptamères chiraux [154]. L’avantage de ces techniques, par rapport aux précédentes méthodes tout-optiques, réside dans leur résolution spatiale

élevée du fait de la courte longueur d'onde du faisceau d'électron utilisé pour exciter les structures plasmoniques. Cependant, les signaux mesurés sont généralement difficiles à interpréter en comparaison avec les méthodes tout-optiques.

### 7.3 Description de l'expérience

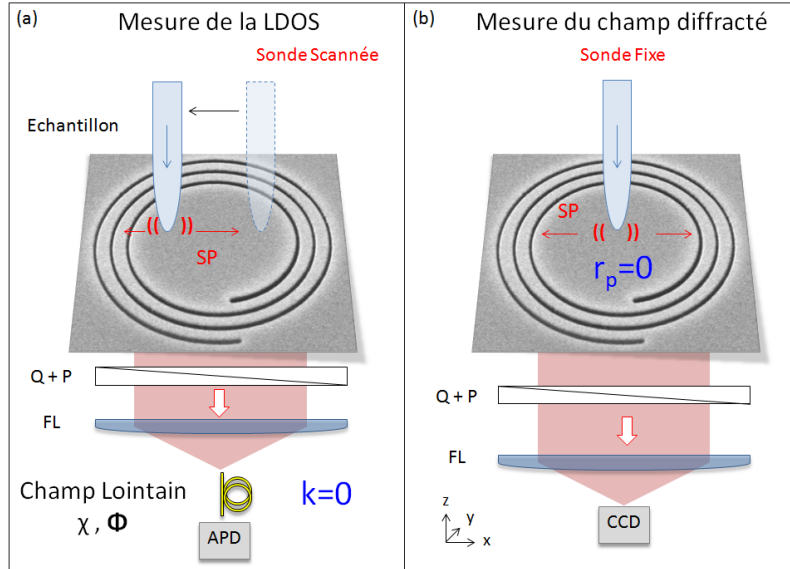


FIGURE 7.3 – Schéma du montage optique. (a) Mesure de la LDOS partielle : la sonde SNOM est balayée en champ proche et le signal est collecté par une fibre optique connectée à une APD. (b) Mesure de l'intensité diffractée : la sonde est fixée à une position proche du centre de la cavité et les images sont capturées par une caméra CCD.

Les vortex générés par les spirales ont été largement étudiés dans la littérature. Celles-ci sont généralement éclairées en champ lointain puis les vortex plasmoniques sont collectés à l'aide d'un SNOM en mode collection [115, 139], ou en LRM comme étudié précédemment. Dans ce travail, nous adoptons le montage optique inverse, c'est à dire que nous utiliserons un SNOM opérant en mode illumination pour exciter les plasmons. Comme détaillé précédemment [134, 155], la LDOS d'un système optique peut être sondée en balayant le champ proche de la structure avec une source ponctuelle  $\mu e^{-i\omega t}$ . Les échantillons sont scannés dans le plan  $xy$  sous la pointe (Fig. 7.3(a)). Un faisceau laser, polarisé linéairement selon  $\mathbf{X}$ , est injecté dans la sonde générant des plasmons de surface qui vont ensuite diffracter sur les sillons de la cavité. Pour chaque position de la source ponctuelle, le signal est recueilli en espace libre par une fibre optique reliée à une photodiode à avalanche (*Avalanche Photodiode*, APD). Elle enregistre le signal puis reconstruit spatialement une image en 2D de la LDOS partielle, relative à l'orientation dipolaire  $\hat{\mu} = \boldsymbol{\mu}/|\boldsymbol{\mu}|$ .

Au cours de ce travail, deux types de sonde seront utilisées comme source ponctuelle :

1. Une pointe à ouverture est employée pour mesurer la LDOS projetée sur la composante planaire du dipôle, notée  $\delta\rho_{\parallel} = \delta\rho_x + \delta\rho_y$ . Dans ce cas,  $\hat{\mu}$  se

trouve dans le plan de l'échantillon et est orienté selon la polarisation du laser incident ( $\hat{\mu}_{\parallel} = \hat{x}$ ). La LDOS partielle mesurée correspond alors à la projection sur la composante planaire du dipôle par rapport à l'échantillon. La pointe SNOM est constituée d'une fibre monomode effilée, revêtue d'une couche de 100 nm d'aluminium. Le diamètre moyen à l'extrémité est de  $\phi = 100 \text{ nm}$ . La longueur d'onde du laser injecté est de  $\lambda = 633 \text{ nm}$ .

2. La composante normale de la LDOS, notée  $\delta\rho_{\perp} = \delta\rho_z$  est mesurée à l'aide d'une sonde active. C'est une pointe fonctionnalisée avec un nano-diamant, de taille moyenne  $\phi = 100 \text{ nm}$ , et contenant des centres colorés NV. La longueur d'onde du laser injecté est de  $\lambda = 532 \text{ nm}$ .

Leurs tailles sub-longueur d'onde ( $\phi \ll \lambda$ ) justifient leur utilisation comme dipôle-source pour cartographier la LDOS.

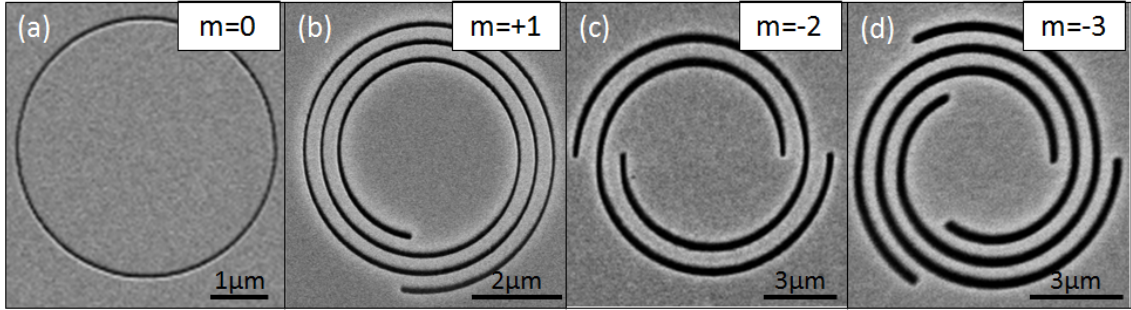


FIGURE 7.4 – Images MEB des échantillons.

Pour établir la preuve de principe, nous étudions comme système chiral canonique, des cavités plasmoniques spirales de différentes charges géométriques  $m$  (Fig. 7.4). Les échantillons sont fabriqués par gravure FIB d'un film d'or évaporé sur un substrat de verre. Une cavité plasmonique circulaire servira de référence pour comparer les effets de brisure de symétrie sur la LDOS. En base polaire  $(O, r, \theta)$ , une spirale d'Archimède est décrite comme suit :

$$r(\theta) = \frac{a}{2\pi}m\theta \quad \text{avec} \quad \theta \in \left[ \theta_0 = \frac{2\pi r_0}{am}; \theta_0 + 2\pi n \right], \quad (7.6)$$

avec  $m$  la charge géométrique,  $n$  le nombre de tours,  $r_0$  la distance entre le centre O et le début de la spirale et le pas  $a = \lambda_{SP}$  est égal à la longueur d'onde plasmons pour obtenir une excitation résonante.

Nous rappelons que la LDOS totale peut se déduire de l'intensité du champ à l'aide de l'Eq. 7.1 et en posant  $P(\omega, \mathbf{r}_p) = \hbar\omega\Gamma(\omega, \mathbf{r}_p)$ . On obtient alors :

$$\rho(\omega, \mathbf{r}_p) = \frac{3}{\pi\omega^2|\boldsymbol{\mu}|^2}P(\omega, \mathbf{r}_p), \quad (7.7)$$

où  $\mathbf{r}_p$  est la position du dipôle et  $P(\omega, \mathbf{r}_p)$  la puissance du dipôle résultant des échanges radiatifs et non-radiatifs avec l'environnement. Précisons que nous nous intéressons ici aux canaux radiatifs de la LDOS partielle par conséquent seuls les

modes propagatifs sont détectés en champ lointain. Nous travaillons en régime monochromatique si bien qu'on omettra la variable  $\omega$  par la suite. D'une part, à l'aide d'une lentille de Fourier amovible et de la fibre APD de collection, nous pouvons détecter, de manière sélective, les modes émettant dans une direction spécifique  $\mathbf{k} = k_x\hat{x} + k_y\hat{y}$  compris sur une plage  $\delta^2k$ . Plusieurs travaux ont souligné l'importance d'une cartographie résolue en fréquences spatiales pour le contrôle en directivité de sources lumineuses [146, 153, 156, 136]. La résolution en fréquence spatiale  $\delta^2\mathbf{k}$  est déterminée par l'ouverture numérique de la fibre APD (N.A.=0.22) soit :

$$\delta^2k \simeq \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \pi r^2, \quad (7.8)$$

où  $r = 25 \mu m$  est le rayon de la fibre APD. Introduite dans [157], la mesure de LDOS résolue en fréquences spatiales, a notamment permis de caractériser la LDOS associée aux plasmons propagatifs et dont le principe repose sur une intégration restreinte du signal LRM sur le cercle plasmonique. Dans le cas présent, nous démontrerons que la LDOS partielle manifeste un comportement chiral principalement autour de l'axe optique. C'est pourquoi la fibre APD est positionnée de manière à n'intégrer qu'une fraction des modes centrés autour de  $\mathbf{k} = 0$ .

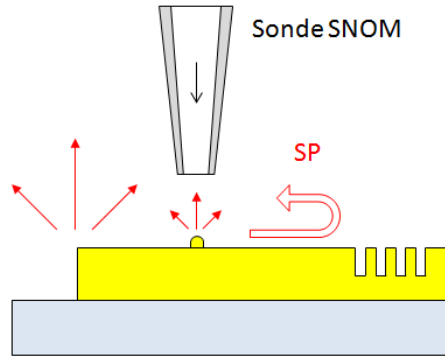


FIGURE 7.5 – Exemples de mécanismes pouvant altérer l'émission d'une sonde SNOM : excitation par des plasmons de surface localisés, par des plasmons diffractés sur une arête de l'échantillon ou encore par la rétro-réflexion des plasmons de surface sur la pointe.

D'autre part, nous introduisons le concept de polarisation locale de LDOS. Pour ce faire, nous combinons une tomographie en polarisation à la technique de SNOM pour analyser la polarisation des modes de cavité. A l'aide d'une lame quart-d'onde et d'un polariseur placés après l'objectif de collection, la LDOS est projetée sur chaque base de polarisation  $\mathbf{u}$  : polarisations linéaires  $\mathbf{X}$ ,  $\mathbf{Y}$ ,  $\mathbf{P}$  ( $+45^\circ$ ),  $\mathbf{M}$  ( $-45^\circ$ ), et polarisations circulaires  $\mathbf{S} = \mathbf{L}$  ( $s_+ = +1$ ) gauche et  $\mathbf{R}$  ( $s_- = -1$ ) droite. Plusieurs travaux récents ont notamment été consacrés à la caractérisation de structures chirales résolue en polarisation [158, 154]. Par exemple, citons les travaux récents de Hashiyada et al. qui, par cette même technique, rapporte des effets chiraux liés aux plasmons localisés induits par des nanoparticules non chirales métalliques [145]. Toutefois, leur analyse n'est pas interprétée en terme de LDOS et est restreinte à l'étude polarimétrique du champ diffracté par la nanostructure. En effet, en raison

de la nature localisée des plasmons mis en jeu, le champ d'excitation peut être fortement perturbé.

Comme illustré sur la Fig. 7.5, le champ émis par une sonde SNOM peut être perturbé par la présence de nanostructures placées à proximité de la pointe. Par exemple, des plasmons localisés, diffractés ou rétro-réfléchis sur la pointe peuvent fortement modifier l'émission du dipôle source. Or, il a été discuté dans [159, 142] que pour sonder la LDOS, le champ émis par le dipôle doit être constant durant la mesure.

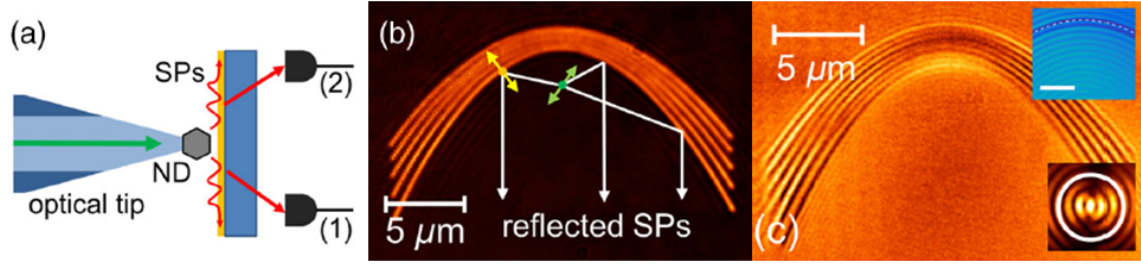


FIGURE 7.6 – (a) Schéma de l'expérience : une pointe SNOM, fonctionnalisée avec un nanodiamant, excite les plasmons de surface à la surface d'un film métallique. (1) et (2) correspondent à des APD fibrées. (b) Image optique des paraboles plasmoniques. La flèche verte représente la position de la pointe. (c) Image de la LDOS mesurée pour un détecteur aligné avec la pointe. La simulation correspondante est présentée dans l'encart supérieur. L'encart inférieur montre l'émission de la pointe dans le plan direct et le cercle blanc délimite la zone de collection du signal. Tirées de [157].

Ainsi, par l'intermédiaire des plasmons de surface délocalisés et en opérant en régime de saturation dans le cas d'une sonde à nanodiamant, les travaux de M. Berthel [157] permettent de confirmer la validité de notre configuration expérimentale pour sonder la LDOS. Pour cela, il a étudié la LDOS plasmonique par le biais de paraboles gravées sur un film d'or (Fig. 7.6). Celles-ci ont la faculté de réfléchir les plasmons en un faisceau plasmonique collimaté lorsque la sonde SNOM d'excitation est placée au point de focalisation des paraboles (représentée par la flèche verte sur la Fig. 7.6(b)). Le résultat majeur de cette étude est que la LDOS plasmonique maximale en ce point. Afin de s'assurer que l'émission de la source n'était pas altérée par les plasmons réfléchis, il a mesuré la LDOS avec un détecteur aligné sur la pointe. Comme on peut le visualiser sur la Fig. 7.6(c), le signal présente une distribution spatiale constante lorsque l'émetteur se situe loin des sillons, ce qui signifie que le champ émis par la sonde n'est pas modifié par la réflexion des plasmons. Cette démonstration vérifie que notre méthode respecte bien les conditions requises pour la mesure de la LDOS. Ce point sera également appuyé par des simulations dans la suite de ce chapitre.

Les modes de cavité, polarisés selon  $\mathbf{u}$  et intégrés dans  $\delta^2\mathbf{k}$ , sont définis comme suit :

$$\delta\rho^u(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) = \frac{3}{\pi\mu^2\omega^2} |\mathbf{E}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) \cdot \mathbf{u}|^2 \delta^2k, \quad (7.9)$$

où  $\mathbf{E}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p)$  est le champ diffracté. L'Eq. 7.9 décrit la capacité d'une source, localisée à  $\mathbf{r}_p$ , à pouvoir émettre dans un canal paraxial de polarisation  $\mathbf{u}$  donné. En intégrant sur tout les canaux, nous retrouvons l'Eq. 7.7. Il est possible de mesurer physiquement un de ces modes, en implémentant le montage illustré sur la Fig. 7.3(b) : la sonde est maintenue à une position fixe par rapport à l'échantillon et la détection du signal n'est plus restreinte à  $\delta^2\mathbf{k}$ . Ce montage, qui emploie une caméra CCD pour imager un spectre étendu de fréquences spatiales, permettra également de caractériser l'orientation des dipôles par imagerie LRM.

## 7.4 Mesure de la LDOS partielle planaire $\delta\rho_{\parallel}$

### 7.4.1 Orientation du dipôle source

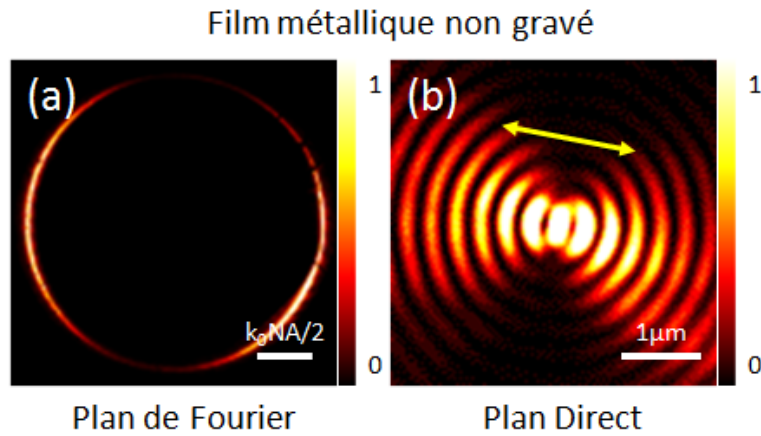


FIGURE 7.7 – Caractérisation de la pointe à ouverture par imagerie LRM sur un film métallique non-gravé : (a) plan de Fourier, (b) plan direct. Pour la mesure (b), un filtre spatial est placé dans le plan de Fourier pour bloquer les signaux à  $k < k_{SP}$ . La flèche jaune indique la direction de polarisation du dipôle. Echelle de couleur : Intensité (u.a.).

Puisque la LDOS partielle dépend de l'orientation du dipôle source, il est nécessaire de déterminer au préalable le champ émis par la sonde SNOM. Pour caractériser la nature du dipôle induit, nous utilisons l'imagerie LRM. Un film d'or dépourvu de nanostructure, d'épaisseur 50 nm, est illuminé en champ proche par la sonde. Dans le cas d'une pointe à ouverture, le cercle plasmonique est formé de deux arcs lumineux situé à  $k = k_{SP}$  dans le plan de Fourier (Fig. 7.7(a)). Ce signal est caractéristique d'une excitation plasmonique par un dipôle électrique orienté dans le plan de l'échantillon. Cette observation est en accord avec les résultats expérimentaux rapportés dans la littérature [160, 41]. De plus, à  $k < k_{SP}$ , nous vérifions que l'intensité de la pointe, qui est directement transmise par le film, génère un fond uniforme d'intensité négligeable. Cette contribution pourra donc être négligée par la suite. Dans le plan direct (Fig. 7.7(b)), le signal plasmonique apparaît comme deux lobes orientés selon la polarisation du dipôle. Les franges d'interférence résultent du spot

d'Airy causé par l'ouverture numérique finie de l'objectif de collection [161, 42, 72]. Ce premier contrôle est crucial pour l'étude de la chiralité optique car il nous informe sur la qualité de la sonde et sur la symétrie du champ émis : cette pointe à ouverture agit effectivement comme un dipôle dont l'orientation est parallèle au plan de l'échantillon ( $\boldsymbol{\mu}_{\parallel}$ ). Par conséquent, lorsque l'échantillon est excité par cette sonde, les modes mesurés seront associés à la composante planaire de la LDOS partielle soit  $\delta\rho_{\parallel}$ .

## 7.4.2 Cavité plasmonique chirale

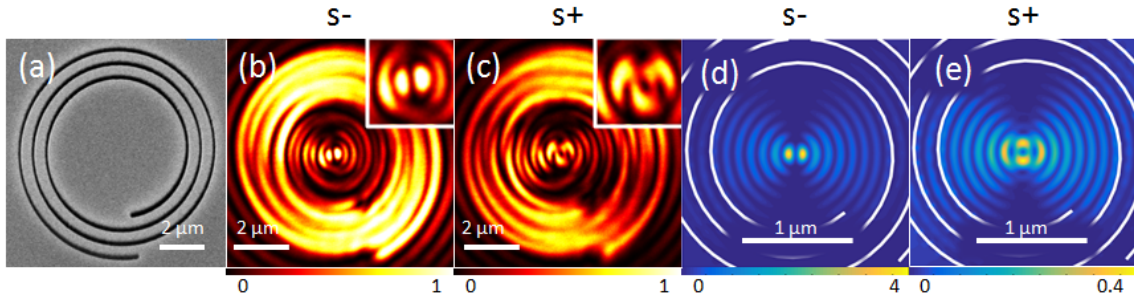


FIGURE 7.8 – (a) Image MEB de l'échantillon. (b-c) Cartographies LDOS  $\delta\rho_{\parallel}$  mesurées sur les bases de polarisation circulaires  $s_{\pm}$ . Encarts : zoom sur la partie centrale. (d-e) Simulations théoriques correspondantes. Echelle de couleur : Intensité (u.a.).

Après avoir identifié la symétrie du dipôle source, mesurons la LDOS partielle  $\delta\rho_{\parallel}$  associée à la spirale de charge géométrique  $m = 1$ . Celle-ci est gravée sur un film d'or fin de 50 nm (Fig. 7.8(a)). Sur la Fig. 7.8(b-c), on remarque que  $\delta\rho_{\parallel}$  manifeste une réponse chirale marquée au voisinage du centre de la spirale ( $\mathbf{r} \simeq 0$ ). Lorsque le signal est analysé dans la base  $\mathbf{L}$  ( $s_+$ ), nous percevons deux spots lumineux (Fig. 7.8 (b)) alors que sur  $\mathbf{R}$  ( $s_-$ ), nous observons un motif complexe avec un minimum d'intensité au centre (Fig. 7.8(c)). Au voisinage du sillon, le signal détecté correspond à la lumière directement transmise à travers la fente. Il est important de souligner que ces mesures peuvent être reliées à la LDOS partielle seulement dans la région centrale de la structure, où le champ du dipôle source peut être considéré comme constant [159]. Comme discuté précédemment, au voisinage des sillons, celui-ci peut être altéré par les plasmons localisés ou rétro-réfléchis par le réseau [157]. La compréhension de ces motifs complexes est obtenue analytiquement par un modèle dipolaire où le champ résulte de la superposition cohérente de sources ponctuelles, uniformément réparties sur les sillons de la cavité.

### Modèle théorique

La sonde SNOM est modélisée comme une source ponctuelle. Le dipôle électrique associé  $\boldsymbol{\mu}$  génère des plasmons qui se découplent en onde propagative après diffraction sur le sillon. Chaque point du sillon  $M$  se comporte comme un point source émettant un champ électrique  $\mathbf{E}(M)$  dans le plan direct. En coordonnées polaires

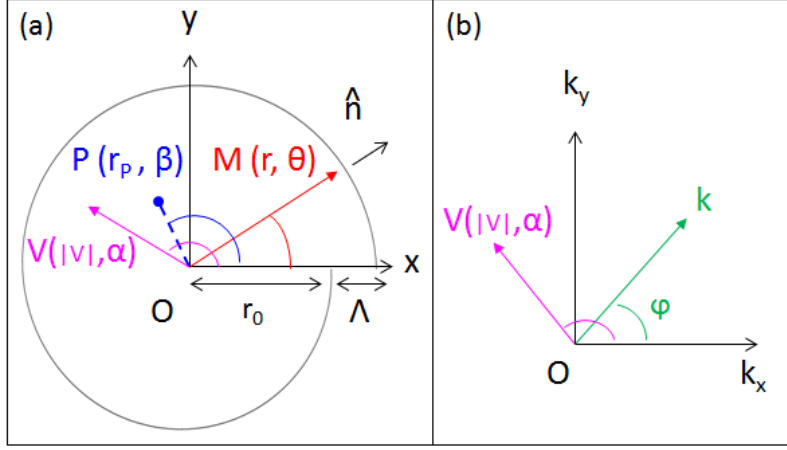


FIGURE 7.9 – Schéma d'une cavité spirale : (a) plan direct, (b) plan de Fourier. Le dipôle source est localisé au point  $P$ . La flèche rose représente le vecteur  $\mathbf{V} = k_{SP}\mathbf{r}_p + \rho\mathbf{k}$ .

$(O, \hat{r}, \hat{\theta})$ , ce champ est donné par [18, 41] :

$$\mathbf{E}(M) \propto \frac{e^{ik_{SP}|\mathbf{PM}|}}{\sqrt{|\mathbf{PM}|}} (\boldsymbol{\mu} \cdot \hat{r}) \hat{r}, \quad (7.10)$$

avec  $\mathbf{OM} := [r, \theta]$  et la position du dipôle  $\mathbf{r}_p = \mathbf{OP} := [r_p, \beta]$  (voir notations Fig. 7.9(a)). Pour une position donnée de la pointe, le champ diffracté peut s'exprimer dans l'espace de Fourier sous la forme :

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) \propto f(k) \mathbf{E}(M) e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{OM}}. \quad (7.11)$$

La fonction  $f(k)$  représente la fonction d'étalement du point du système optique. Nos données expérimentales montrent que pour  $k < k_{SP}$ ,  $f(k)$  peut être considérée comme constante (Fig. 7.7(a)). Le dipôle est scanné au voisinage du centre ( $r_p \ll r$ ) où son émission peut être considérée comme constante pendant la mesure et non altérée par les plasmons rétroréfléchis (voir la discussion ci-dessus). En additionnant de façon cohérente les rayonnements émis par les dipôles électriques qui sont uniformément répartis sur la spirale, on trouve :

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) \propto \int_{\theta_0}^{\theta_0+2\pi n} \frac{e^{ik_{SP}|\mathbf{PM}|}}{\sqrt{|\mathbf{PM}|}} e^{-ir(\mathbf{k} \cdot \hat{r})} (\boldsymbol{\mu} \cdot \hat{r}) (\hat{r} \cdot \hat{n}) \hat{n} dl \quad (7.12)$$

$$= \int_{\theta_0}^{\theta_0+2\pi n} \frac{e^{ik_{SP}r}}{\sqrt{r}} e^{-iV \cos(\alpha-\theta)} (\boldsymbol{\mu} \cdot \hat{r}) r \hat{r} d\theta, \quad (7.13)$$

où  $\hat{n}$  est un vecteur unitaire normal à la spirale et où nous avons posé :

$$\mathbf{V} = k_{SP}\mathbf{r}_p + r\mathbf{k} \quad \text{avec} \quad \mathbf{V} := [V, \alpha]. \quad (7.14)$$

Comme  $r \gg a$ , nous faisons l'approximation qu'une spirale faisant  $n$  tours peut être



décrite comme  $n$  cercles de rayon  $r_n = r_0 + nma$ . Nous en déduisons :

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) \simeq \sum_n \oint \sqrt{r_n + \frac{am}{2\pi}} \theta e^{ik_{SP}(r_n + \frac{am}{2\pi}\theta)} e^{-iV \cos(\alpha-\theta)} (\boldsymbol{\mu} \cdot \hat{\mathbf{r}}) \hat{\mathbf{r}} d\theta \quad (7.15)$$

$$\approx \sum_n \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} \oint e^{im\theta} e^{-iV \cos(\alpha-\theta)} (\boldsymbol{\mu} \cdot \hat{\mathbf{r}}) \hat{\mathbf{r}} d\theta. \quad (7.16)$$

Lorsque la cavité est excitée par un dipôle électrique orienté dans le plan de l'échantillon  $\hat{\boldsymbol{\mu}}_{\parallel} = \hat{x}$ , l'expression du champ dans les états de polarisation circulaires s'écrit :

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) \simeq \sum_n \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} \oint e^{im\theta} e^{-iV \cos(\alpha-\theta)} \left( \frac{e^{i\theta} + e^{-i\theta}}{2} \right) \left( \frac{e^{i\theta} \hat{s}_- + e^{-i\theta} \hat{s}_+}{\sqrt{2}} \right) d\theta \quad (7.17)$$

$$= \mathbf{E}_{s_-} + \mathbf{E}_{s_+}, \quad (7.18)$$

avec

$$\mathbf{E}_{s_-} \propto \sum_n \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} \{(-ie^{i\alpha})^m J_m(V) + (-ie^{i\alpha})^{m-2s_-} J_{m-2s_-}(V)\} \hat{s}_-, \quad (7.19)$$

$$\mathbf{E}_{s_+} \propto \sum_n \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} \{(-ie^{i\alpha})^m J_m(V) + (-ie^{i\alpha})^{m-2s_+} J_{m-2s_+}(V)\} \hat{s}_+. \quad (7.20)$$

où  $J_l$  est la fonction de Bessel d'ordre  $l$ . Une attention particulière doit être portée sur le vecteur  $\mathbf{V}(\mathbf{r}_p, \mathbf{k})$  décrit par l'Eq. 7.14. En effet, selon les valeurs prises par  $\mathbf{r}_p$  et  $\mathbf{k}$ , les expressions des champs établies par les Eq. 7.19-7.20 vont décrire soit la mesure de la LDOS par le montage de la Fig. 7.3(a), soit le champ diffracté mesuré dans la configuration de la Fig. 7.3(b).

Sur le montage de la Fig. 7.3(a), la fibre APD sélectionne les signaux proches de  $\mathbf{k} \approx 0$  et la pointe SNOM est balayée à la surface de l'échantillon. Dans ce cas,  $\mathbf{V} = k_{SP}\mathbf{r}_p$  et  $\alpha = \beta$  est l'angle entre  $\mathbf{r}_p$  et  $\hat{x}$ . L'intensité mesurée sur les bases de polarisations circulaire  $\mathbf{S}=\mathbf{L}$  ou  $\mathbf{R}$  ( $s_{\pm} = \pm 1$ ) nous donne la LDOS partielle intégrée dans  $\delta^2\mathbf{k}$  et définie comme suit :

$$\delta\rho_{\parallel}^S(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) = \frac{3}{\pi\mu^2\omega^2} |\mathbf{E}(\mathbf{k} \approx 0, \mathbf{r}_p) \cdot \mathbf{S}|^2 \delta^2k, \quad (7.21)$$

soit

$$\delta\rho_{\parallel}^{s_{\pm}}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) \propto \left| \sum_n \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} \{(-ie^{i\beta})^m J_m(V) + (-ie^{i\beta})^{m-2s_{\pm}} J_{m-2s_{\pm}}(V)\} \right|^2. \quad (7.22)$$

Par conséquent, les canaux disponibles d'émission pour un dipôle horizontal sont décrits par une combinaison de modes de Bessel. Ces vortex optiques manifestent un comportement chiral, sensible à la polarisation circulaire  $s_{\pm}$ . L'inégalité  $\delta\rho_{\parallel}^{s_+} \neq \delta\rho_{\parallel}^{s_-}$  signifie que lorsque le dipôle est placé dans une cavité spirale, il rayonne sur des canaux de fréquences spatiales différentes selon  $s_{\pm}$ . Les ordres sont gouvernés par une règle de sélection OAM donnée par  $l = m$  et  $l = m - 2s_{\pm}$  qui est directement

liée à  $s_{\pm}$  mais aussi à la chiralité de la cavité  $m$ . Ce résultat est la manifestation d'un couplage spin-orbite de la lumière et souligne notamment que la LDOS partielle peut être sculptée au moyen de la charge géométrique  $m$  de la spirale.

Dans le cas d'une spirale de charge géométrique  $m = 1$ , la LDOS partielle est donnée par :

$$\delta\rho_{\parallel}^{s-}(\mathbf{k} \approx 0, \mathbf{r}_p) \propto \left| \sum_n^3 \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} \right|^2 \{J_1^2(V) + J_3^2(V) + J_1(V)J_3(V) \cos(2\beta)\}, \quad (7.23)$$

$$\delta\rho_{\parallel}^{s+}(\mathbf{k} \approx 0, \mathbf{r}_p) \propto \left| \sum_n^3 \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} \right|^2 \{J_1^2(V) + J_{-1}^2(V) + J_1(V)J_{-1}(V) \cos(2\beta)\}. \quad (7.24)$$

A partir de cette analyse, nous trouvons un très bon accord entre la LDOS mesurée et les simulations théoriques correspondantes (Fig. 7.8(d),(e)). J'ai notamment réalisé ces simulations pour un dipôle purement horizontal, ce qui confirme que nous sondons effectivement la composante planaire de la LDOS partielle. Précisons que ces simulations intègrent une description plus fine du système optique basée sur une expansion modale rigoureuse des champs TE et TM. Cette description, développée par A. Drezet, permet de prendre en compte les effets d'imagerie du SNOM. Par souci de clarté, le présent manuscrit ne présente pas cette description que l'on peut trouver dans [72, 42].

Les cartes de LDOS ainsi mesurées peuvent se comprendre de la manière suivante : la source a une probabilité élevée d'émettre une polarisation  $\mathbf{R}$  ou  $\mathbf{L}$  aux endroits où la LDOS est intense, c'est à dire lorsque la pointe est située à proximité du centre de la spirale. De plus, la LDOS prédit qu'à cette position les canaux d'émission présentent une réponse chirale.

### Champ diffracté

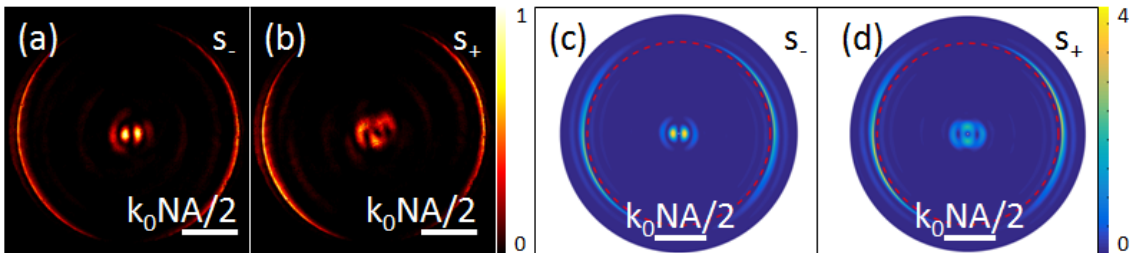


FIGURE 7.10 – (a-b) Images mesurées dans le plan de Fourier : la sonde SNOM est localisée au centre de la cavité et le signal est analysé sur les bases de polarisations circulaires  $s_{\pm}$ . (c-d) Simulations théoriques correspondantes. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

Pour relier cette grandeur à un mode physique, nous examinons maintenant la cavité à l'aide du montage de la Fig. 7.3(b). La position de la sonde SNOM est fixée à  $\mathbf{r}_p = 0$

et les images sont enregistrées dans le plan de Fourier par la caméra CCD. D'une part, nous retrouvons sur les Fig. 7.10(a), (b), les deux arcs lumineux à  $k = \Re(k_{SP})$ , caractéristiques d'une onde plasmonique lancée par un dipôle horizontal. D'autre part, le signal est fortement localisé autour de  $\mathbf{k} \simeq 0$  et présente un comportement sensible à la polarisation circulaire. Cette réponse chirale est réminiscente de l'effet spin Hall optique dans lequel les photons polarisés  $\mathbf{L}$  et  $\mathbf{R}$  se propagent avec des trajectoires de vecteurs d'onde distincts.

Enfin, nous constatons des similitudes frappantes avec la LDOS partielle. En effet, la configuration illustrée par la Fig. 7.3(b) correspond à  $\mathbf{r}_p \approx 0$ , soit  $\mathbf{V} = r_n \mathbf{k}$  et  $\alpha = \varphi$  l'angle entre  $\mathbf{k}$  et  $k_x$ . L'intensité enregistrée par la caméra CCD dans le plan de Fourier, est donc proportionnelle à  $|\mathbf{E}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p \approx 0)|^2$  :

$$I_{s_{\pm}}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p \approx 0) \propto \left| \sum_n \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} \{(-ie^{i\varphi})^m J_m(V) + (-ie^{i\varphi})^{m-2s_{\pm}} J_{m-2s_{\pm}}(V)\} \right|^2. \quad (7.25)$$

Ainsi, nous trouvons que  $\delta\rho_{\parallel}^{s_{\pm}}$  et  $I_{s_{\pm}}$  sont décrits par les mêmes modes de Bessel  $J_m$  et  $J_{m-2s_{\pm}}$ . En accord avec la LDOS mesurée précédemment, l'émission paraxiale d'une source placée au centre de la cavité apparaît comme des modes chiraux. La similarité entre ces deux grandeurs vient du fait qu'elles sont décrites par le même champ  $\mathbf{E}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p)$  et où  $\mathbf{V} = k_{sp}\mathbf{r}_p + r\mathbf{k}$ . Or, la mesure de la LDOS implique  $\mathbf{k} = 0$  soit  $\mathbf{V} = k_{sp}\mathbf{r}_p$  alors que dans le cas du champ diffracté, la pointe SNOM est fixe à  $\mathbf{r}_p = 0$  d'où  $\mathbf{V} = r\mathbf{k}$ . Ce résultat explique les similitudes entre la LDOS et le champ diffracté et dont la démonstration expérimentale est rendue possible grâce à la détection résolue en fréquences spatiales  $\delta^2\mathbf{k}$ . Les simulations théoriques reproduisent avec fidélité les images expérimentales (Fig. 7.10(c-d)). Toutefois, des écarts sont visibles et peuvent être attribués aux erreurs expérimentales (désalignement de l'installation, incertitudes des polariseurs, erreur de position de la pointe) mais aussi à une légère orientation hors-plan du dipôle qui n'a pas été prise en compte dans le modèle théorique.

### 7.4.3 Cavité plasmonique circulaire

Pour confirmer l'origine du comportement chirale de la LDOS, nous étudions maintenant la LDOS d'une cavité non chirale. Elle se compose d'un cercle de rayon  $R_0 = 2 \mu\text{m}$  gravé sur  $200 \text{ nm}$  d'or (Fig. 7.11(a)). Les plasmons sont excités par la même sonde à ouverture que précédemment.

Contrairement à ce qui a été trouvé pour la cavité spirale, la LDOS partielle présente un diagramme de rayonnement identique quelque soit la polarisation circulaire avec un maximum d'intensité au centre  $\delta\rho^{s+} = \delta\rho^{s-}$  (Fig. 7.11 (b), (c)). Ces cartes traduisent le fait qu'une source située au centre d'une cavité symétrique émet dans des modes polarisés droite et gauche identiques. La LDOS est non chirale. En effet, le champ diffracté par une cavité circulaire s'écrit :

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) \approx \oint \mathbf{E}(M) e^{-iR_0(\mathbf{k} \cdot \hat{r})} R_0 d\theta = \sqrt{R_0} e^{ik_{SP}R_0} \oint e^{-i\mathbf{V} \cdot \hat{r}} (\boldsymbol{\mu} \cdot \hat{r}) \hat{r} d\theta, \quad (7.26)$$

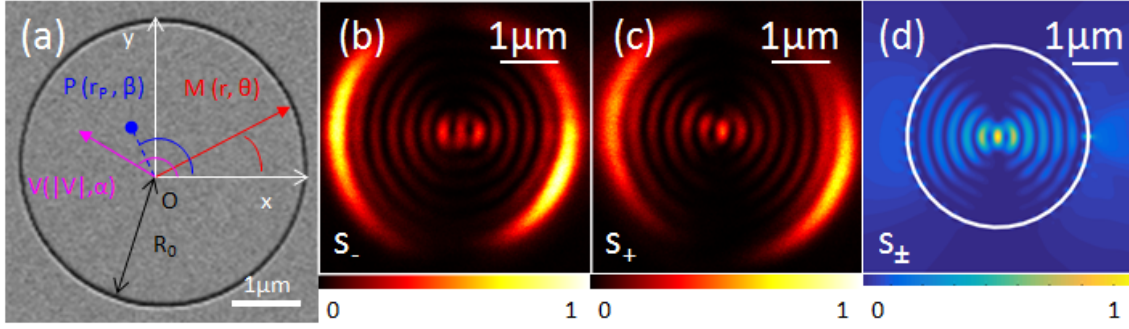


FIGURE 7.11 – (a) Image MEB de l'échantillon. (b-c) Cartographies LDOS  $\delta\rho_{\parallel}$  mesurées sur les bases de polarisation circulaires  $s_{\pm}$ . (d) Simulations théoriques correspondantes. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

où  $\mathbf{V} = k_{SP}\mathbf{r}_p + R_0\mathbf{k}$ . La LDOS partielle s'exprime de façon identique sur les deux bases de polarisation circulaire :

$$\delta\rho_{\parallel}^{s_{\pm}}(\mathbf{k} \approx 0, \mathbf{r}_p) \propto J_0^2(V) + J_2^2(V) - 2J_0(V)J_2(V)\cos(2\beta), \quad (7.27)$$

avec  $\mathbf{V} = k_{SP}\mathbf{r}_p$  et  $\alpha = \beta$  l'angle entre  $\mathbf{r}_p$  et  $\hat{x}$  (Fig. 7.11(a)). Indépendamment de  $s_{\pm}$ , les modes se définissent comme une combinaison de modes de Bessel d'ordre  $l = 0$  et  $2$ . Ce résultat confirme que le comportement chiral ou non-chiral de  $\delta\rho_{\parallel}$  est directement connecté à la symétrie de la cavité dans laquelle est placé l'émetteur. Dans une cavité spirale, à chaque polarisation  $s_+$  et  $s_-$  est attribué un canal d'émission différent. Dans une cavité circulaire, un seul canal est disponible pour les deux polarisations circulaires.

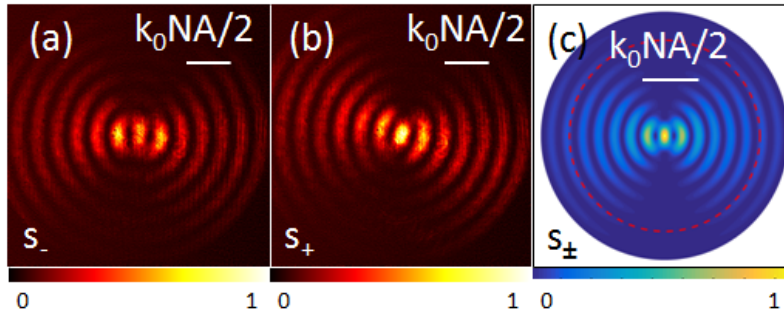


FIGURE 7.12 – (a-b) Images mesurées dans le plan de Fourier : la sonde SNOM est localisée au centre de la cavité et le signal est analysé sur les bases de polarisations circulaires  $s_{\pm}$ . (c) Simulation théorique correspondante. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

Ce mode unique est mis en évidence dans le plan de Fourier (Fig. 7.12). Notons qu'ici, l'épaisseur du film ne permet pas aux plasmons de fuir. Les franges observées sont dues aux interférences entre les ondes diffractées, similaires à celle produites par une double fente [162]. Nous retrouvons également que la distribution en intensité

est décrite par les mêmes modes de Bessel  $J_0$  et  $J_2$  que la LDOS partielle :

$$I_{s_{\pm}}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p \approx 0) \propto J_0^2(V) + J_2^2(V) - 2J_0(V)J_2(V) \cos(2\varphi), \quad (7.28)$$

avec  $\mathbf{V} = R_0\mathbf{k}$  et  $\alpha = \varphi$  l'angle entre  $\mathbf{k}$  et  $k_x$ .

En résumé, nous avons sondé la composante planaire de la LDOS partielle d'une cavité plasmonique spirale. Elle manifeste un comportement chiral sensible à la polarisation circulaire. Notre étude analytique a permis de comprendre les mécanismes physiques donnant lieu à la formation de modes de Bessels. Du fait de l'interaction spin-orbite de la lumière, les ordres des vortex optiques sont gouvernés par une règle de sélection directement liée à la géométrie de la spirale. Cette capacité est particulièrement intéressante, car il a été montré que des vortex optiques peuvent augmenter la sensibilité au dichroïsme circulaire de molécules chirales adsorbées dans des nanoparticules plasmoniques [163]. La comparaison avec la LDOS d'une cavité circulaire a permis de confirmer que la chiralité des modes est contrôlée par la symétrie de la cavité.

## 7.5 Mesure de la LDOS partielle normale $\delta\rho_{\perp}$

A présent, pour mesurer la LDOS partielle associée à la composante verticale du dipôle, nous appliquons la méthode précédente en sondant cette fois la cavité avec une sonde active, plus précisément, avec une pointe fonctionnalisée avec un nanodiamant contenant des centres NV [164, 160]. Alors que les molécules fluorescentes conventionnelles ont été largement utilisées pour les mesures de LDOS, travailler avec des centres NV permet d'étendre la méthode de caractérisation au régime quantique d'excitation, hautement pertinent pour des applications en nanophotonique quantique [165, 88, 147, 142]. De plus, grâce à leur photostabilité élevée, les centres NV peuvent être excités en régime de saturation tout en assurant une émission dipolaire constante dans le temps, contrairement aux molécules fluorescentes conventionnelles. Cartographier la LDOS avec une pointe SNOM quantique fonctionnant dans le régime de saturation est donc très robuste, même loin du centre de la structure.

### 7.5.1 Caractérisation de la sonde active

Avant d'effectuer les mesures de LDOS, il est nécessaire de caractériser le profil d'émission de la sonde active SNOM. La méthode de fonctionnalisation de la pointe est détaillée au Chapitre 3. Sur la Fig. 7.13(a), on présente une mesure de la fonction d'autocorrélation du second ordre correspondant à un nanodiamant greffé en bout de pointe. La mesure est effectuée sur un substrat de verre. D'une part, le creux antibunching observé à délai nul traduit de la nature quantique du nanodiamant. D'autre part, d'après la formule du  $g^2(\tau)$  établie précédemment, nous pouvons estimer que le nombre de centres NV contenu dans ce nanocristal est de  $10 \pm 1$ .

Ensuite, l'orientation des dipôles est caractérisée par imagerie LRM sur un film d'or non gravé (Fig. 7.13(b)). Le profil d'émission des plasmons présente une intensité

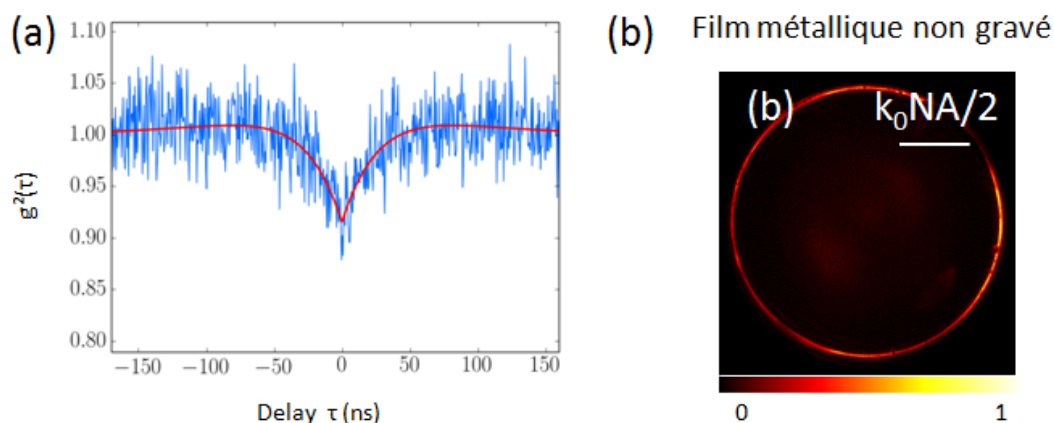


FIGURE 7.13 – (a) Fonction d’autocorrélation du second ordre normalisée  $g^2$  en fonction du délai  $\tau$  mesurée sur la sonde active : les données expérimentales sont représentées en bleu et le fit en rouge. (b) Image obtenue par LRM dans le plan de Fourier d’un film d’or non gravé (épaisseur 50 nm) excité par la sonde active. Echelle de couleur : Intensité (u.a.).

uniforme sur le cercle plasmonique (la rupture dans le coin supérieur droite est attribuée à un artéfact). Cette distribution est caractéristique d’une propagation radiale des plasmons. En effet, la sonde active étant constituée de plusieurs centres NV, ces derniers n’ont a priori aucune direction privilégiée et sont donc orientés aléatoirement au sein du nanodiamant. Ces dipôles se couplent aux plasmons qui vont alors rayonner dans toutes les directions. Ceci explique que l’intensité est constante sur toutes directions  $|\mathbf{k}| = k_{SP}$ , à la différence de la pointe à ouverture classique qui présente une intensité maximale autour de  $k_x = k_{SP}$ . Or, le couplage aux plasmons est plus élevé dans le cas d’une excitation par un dipôle vertical  $\boldsymbol{\mu}_\perp$  que pour un dipôle horizontal [72]. Par conséquent, les composantes hors-plan des NV vont dominer lors de l’interaction avec la cavité. Il en résulte que l’illumination par cette pointe active permet d’accéder à la composante perpendiculaire de la LDOS partielle  $\boldsymbol{\mu}_\perp$ .

## 7.5.2 Cartographie de la LDOS partielle

La sonde est ensuite scannée à la surface de la cavité pour mesurer la composante normale de la LDOS partielle (Fig. 7.14). Lorsque le signal est enregistré sur la base  $s_-$ , le signal présente un maximum d’intensité au voisinage de  $\mathbf{r} = 0$ . A l’inverse, sur la base  $s_+$ , la LDOS est caractérisée par un anneau avec une singularité au centre. Comme précédemment, la cavité spirale génère une LDOS partielle chirale qui se manifeste par des profils sensiblement différents pour les modes polarisés  $s_-$  et  $s_+$ .

**Modèle théorique** Pour expliquer ces profils d’émission, calculons la LDOS partielle associée à un dipôle vertical. A partir de l’Eq. 7.16, on établit que le champ

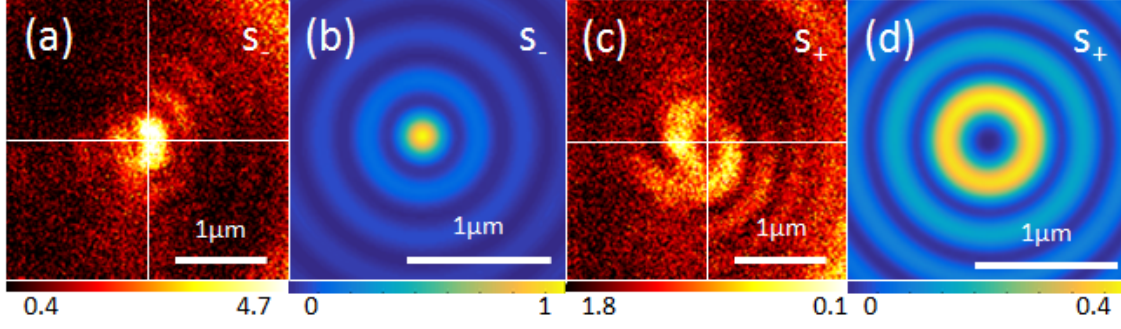


FIGURE 7.14 – Caractérisation de la LDOS par la sonde active : (a, c) Données expérimentales. (b, d) Simulations. L’analyse en polarisation est effectuée comme indiquée par  $s_{\pm}$ . Echelle de couleur : Intensité (u.a.).

rayonné par la cavité excitée par un dipôle  $\hat{\mu}_{\perp} = \hat{r}$  au centre de la spirale s’écrit :

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) \propto \sum_n \mu \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} e^{i\alpha} \{(-i)^{m+s_-} J_{m+s_-}(V) \hat{s}_- + (-i)^{m+s_+} J_{m+s_+}(V) \hat{s}_+\}. \quad (7.29)$$

Pour calculer la LDOS partielle, nous posons  $\mathbf{V} = k_{SP} \mathbf{r}_p$  et  $\alpha = \beta$  soit :

$$\delta\rho_{\perp}^{s_{\pm}}(\mathbf{k} \approx 0, \mathbf{r}_p) \propto \left| \sum_n \mu \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} \right|^2 J_{m+s_{\pm}}^2(V). \quad (7.30)$$

On trouve théoriquement que la LDOS partielle  $\delta\rho_{\perp}$  décrit également des modes chiraux qui dépendent de la polarisation circulaire et de la charge géométrique de la spirale. En revanche, la règle de sélection OAM est différente de celle obtenue pour  $\delta\rho_{\parallel}$ . Elle est maintenant régie par  $l = m + s_{\pm}$ . Pour une spirale de charge géométrique  $m = 1$ , on trouve :

$$\delta\rho_{\perp}^{s_-}(\omega, \mathbf{k} \approx 0, \mathbf{r}_p) \propto \left| \sum_n^3 \mu \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} \right|^2 J_0^2(V), \quad (7.31)$$

$$\delta\rho_{\perp}^{s_+}(\omega, \mathbf{k} \approx 0, \mathbf{r}_p) \propto \left| \sum_n^3 \mu \sqrt{r_n} e^{ik_{SP}r_n} \right|^2 J_2^2(V). \quad (7.32)$$

Les fonctions de Bessel  $J_0^2$  et  $J_2^2$  reproduisent bien le point chaud central et le motif annulaire mesurés respectivement sur les bases  $s_-$  et  $s_+$ . La LDOS partielle peut s’interpréter de la manière suivante : lorsque qu’un dipôle vertical est placé au centre de la spirale, la probabilité d’avoir un canal d’émission ouvert pour la polarisation  $s_-$  est maximale alors qu’il est fermé pour la polarisation  $s_+$ .

### Champ diffracté

Ce comportement est vérifié expérimentalement dans le plan de Fourier en positionnant la pointe à  $\mathbf{r}_p = 0$  (Fig. 7.15). La réponse chirale est principalement observée au voisinage de  $\mathbf{k} = 0$  et l’anneau plasmonique confirme que les plasmons sont bien

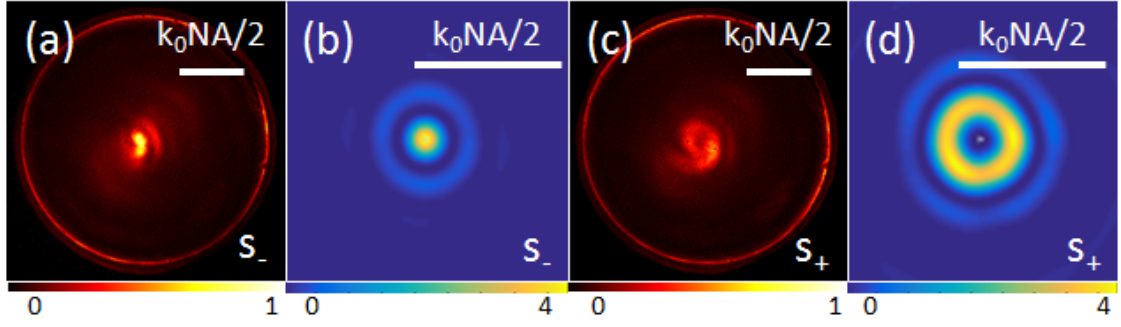


FIGURE 7.15 – Caractérisation LRM du champ diffracté par la cavité excitée par la sonde active : (a, c) Données expérimentales. (b, d) Simulations. L’analyse en polarisation est effectuée comme indiqué par  $s_{\pm}$ . Echelle de couleur : Intensité (u.a.).

produits par les dipôles orientés aléatoirement. L’analyse théorique prévoit effectivement que l’intensité dans le plan de Fourier ( $\mathbf{r}_p = 0$ ,  $V = r_n k$ ) suit la même règle de sélection que la LDOS :

$$I_{s_{\pm}}(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p \approx 0) \propto \left| \sum_n \mu \sqrt{r_n} e^{ik_{SP} r_n} \{(-i)^{m+s_{\pm}} e^{i\varphi} J_{m+s_{\pm}}(V)\} \right|^2. \quad (7.33)$$

Bien qu’en accord avec les données expérimentales, seul le cas idéal d’un dipôle purement vertical n’a été considéré dans les simulations théoriques (Fig. 7.14(b), (d), Fig. 7.15(b), (d)). Un modèle plus réaliste, qui intègre la contribution des composantes planaires des centres NV, pourrait reproduire les divergences observées entre la théorie et l’expérience. Soulignons que malgré le faible nombre de photons émis par la sonde, la résolution et la sensibilité de notre mesure a permis de révéler la chiralité de la LDOS partielle  $\delta\rho_{\perp}$ . Le faible nombre de centre NV contenus dans la sonde active suggère que notre méthode pourrait être étendue à un centre NV unique. Ces résultats ouvrent ainsi des perspectives intéressantes pour les communications optiques où l’information peut être codée sur différents états de polarisation et modes de Bessel [26].

**Bilan** Notre méthode d’analyse est basée sur la détection sélective des modes directionnels et polarisés circulairement dans la LDOS. Elle a permis de rendre compte des effets chiraux et des interactions spin-orbite optique. Nous avons démontré l’influence de la géométrie spirale d’une cavité sur la chiralité des composantes planaires et normales de la LDOS partielle. En particulier, elles apparaissent comme des modes de Bessel qui dépendent de la polarisation circulaire et dont les ordres peuvent être ajustés au moyen de la charge géométrique de la spirale. Notre étude théorique montre également que les LDOS planaires et normales sont gouvernées par des règles de sélection OAM bien distinctes. Notre méthodologie, qui a été démontrée avec une sonde quantique, pourrait être envisagée par exemple dans la caractérisation de dispositifs plasmoniques chiraux visant à moduler les modes optiques en espace libre d’un émetteur quantique sans recourir à des composants volumineux.



## 7.6 Analyse polarimétrique de la LDOS partielle

Les applications dédiées à la détection énanti sélective s'intéresse principalement à la sensibilité des molécules à la polarisation circulaire **R** et **L**. Nous montrons ici qu'une caractérisation de la LDOS étendue sur tout les états de polarisation peut également offrir des potentiels intéressants pour la génération de vortex polarisés [166, 167, 120, 168], et le contrôle en directivité de source lumineuse [169, 170]. Par exemple, Osorio et al. ont récemment étudié par cathodoluminescence (CL) les modes polarisés du signal CL dans des spirales plasmoniques et ont caractérisé l'influence de la position du point d'impact du faisceau d'électrons [137]. La réponse en polarisation de nanospirales a également été étudiée pour la génération d'effets optiques non linéaires [171]. Dans ce contexte, nous introduisons le concept de polarisation locale de LDOS. Cette grandeur permet notamment d'identifier les positions pour lesquelles le couplage d'un émetteur à un mode de polarisation donné sera le plus élevé.

### 7.6.1 Diagramme de polarisation LDOS

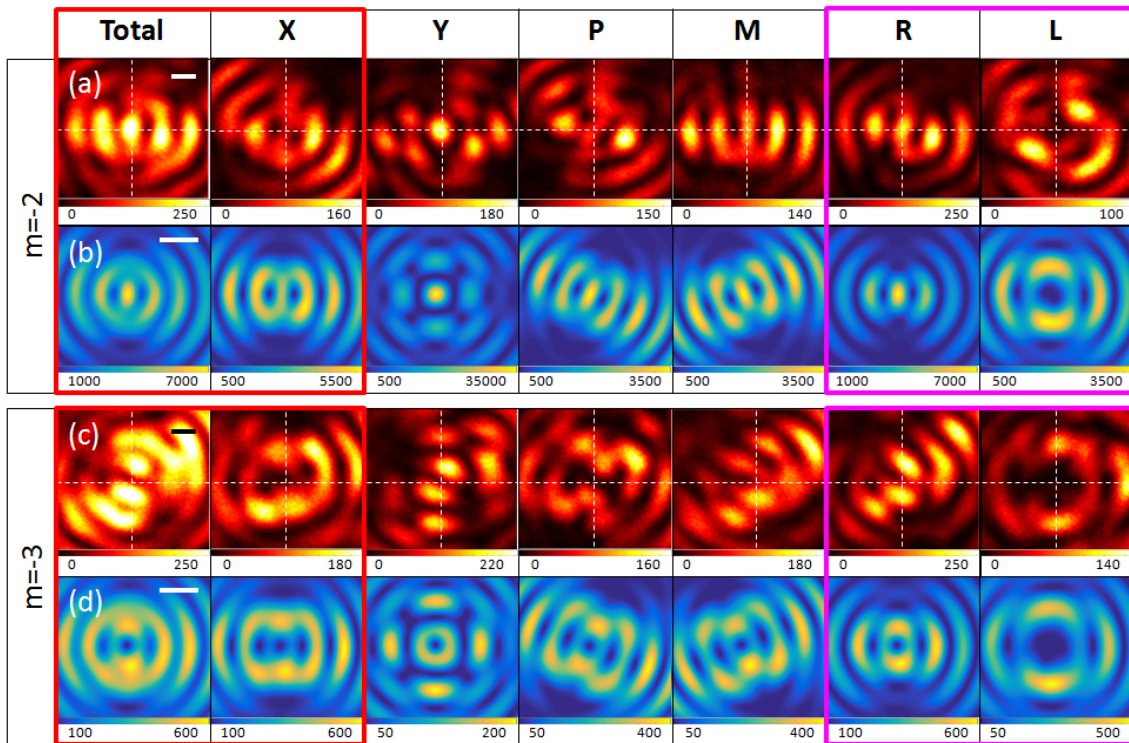


FIGURE 7.16 – Caractérisation de la LDOS partielle plane pour les spirales de charges géométriques  $m = -2$  et  $m = -3$ . (a, c) Données expérimentales. (b, d) Simulations. L'analyse en polarisation est effectuée comme indiquée dans l'entête. Barre d'échelle : 500 nm. Echelle de couleur : Intensité (u.a.).

Pour chaque état de polarisation en sortie **u**, les échantillons sont scannés à l'aide d'une pointe à ouverture polarisée selon **X**. Nous exposons ici les résultats relatifs aux spirales de charges  $m = -2$  et  $-3$ , dont les images MEB sont présentées sur

les Fig. 7.4(c) et (d). Les mesures réalisées sur le cercle  $m = 0$  et la spirale  $m = 1$  peuvent être trouvées en Annexes D et E. Les cartes expérimentales de  $\delta\rho_{\parallel}^u$  projetées sur chaque état de polarisation sont présentées sur la Fig. 7.16. Par la suite, nous omettrons l'indice  $\parallel$ . Ces mesures mettent en évidence la capacité des cavités à façonner la polarisation et la vorticité de la LDOS en des modes spatiaux complexes qui pourraient, par exemple, trouver des applications en micromécanique pour générer des mouvements sophistiqués de microparticules [172, 173].

D'une part, analysons les états linéaires. Tout d'abord, on constate une forte similitude entre  $\delta\rho$  (première colonne, sans analyse de polarisation) et  $\delta\rho^X$  (colonnes encadrées en rouge). En effet, du fait de la polarisation incidente, les plasmons se propagent selon l'orientation du dipôle  $\hat{\mu} = \hat{x}$  et se découplent donc majoritairement en polarisation  $\mathbf{X}$ . Cette observation suggère que les modes polarisés  $\mathbf{X}$  sont dominant en champ lointain. Cette propriété sera notamment exploitée, par la suite, lorsque que nous discuterons du théorème de réciprocité. Selon  $\mathbf{Y}$ , la LDOS associée à  $m = -2$  est dominée par un maximum central à la différence de  $m = -3$ , qui présente une singularité au centre. Cela met en évidence la sensibilité spatiale des modes de polarisation linéaire par rapport la charge géométrique. Enfin, la LDOS sur les bases  $\mathbf{M}$  et  $\mathbf{P}$  présente des distributions complexes, dont les traits majeurs sont qualitativement bien reproduits par les simulations. Celles-ci prévoient notamment des profils identiques et symétriques par rapport à l'axe  $Oy$ .

D'autre part, conformément aux résultats précédents, nous pouvons distinguer une réponse sensible à la polarisation circulaire  $\mathbf{R}$  et  $\mathbf{L}$ , ainsi que la formation de vortex optique dont l'OAM augmente avec  $m$  (encadrés en rose sur la Fig. 7.16). En particulier, le profil modal pour  $m = -2$  passe d'un hotspot central polarisé  $\mathbf{R}$  à un mode vortex polarisé  $\mathbf{L}$ . La spirale  $m = -3$  quant à elle génère des modes de Bessel de rayon variable selon  $\mathbf{R}$  ou  $\mathbf{L}$ . Nous démontrerons, par la suite, que ces données peuvent être directement connectées à la densité et au flux de chiralité des modes de cavité.

## Analyse théorique

Pour comprendre les mécanismes sous-jacents qui donnent lieu à la formation de ces motifs complexes, comme précédemment, nous effectuons des simulations analytiques en additionnant de façon cohérente les rayonnements des dipôles électriques uniformément répartis sur les spirales. Les LDOS partielles sur chacune des bases peuvent se calculer de la manière suivante :

$$\delta\rho^X(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) = \frac{3}{\pi\mu^2\omega^2} |\mathbf{E}^R + \mathbf{E}^L|^2 \delta^2\mathbf{k} \quad (7.34)$$

$$\delta\rho^Y(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) = \frac{3}{\pi\mu^2\omega^2} |\mathbf{E}^R - \mathbf{E}^L|^2 \delta^2\mathbf{k} \quad (7.35)$$

$$\delta\rho^P(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) = \frac{3}{\pi\mu^2\omega^2} |\mathbf{E}^R e^{-i\frac{\pi}{4}} + \mathbf{E}^L e^{+i\frac{\pi}{4}}|^2 \delta^2\mathbf{k} \quad (7.36)$$

$$\delta\rho^M(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) = \frac{3}{\pi\mu^2\omega^2} |\mathbf{E}^R e^{+i\frac{\pi}{4}} + \mathbf{E}^L e^{-i\frac{\pi}{4}}|^2 \delta^2\mathbf{k} \quad (7.37)$$

$$\delta\rho^R(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) = \frac{3}{\pi\mu^2\omega^2} |\mathbf{E}^R|^2 \delta^2\mathbf{k} \quad (7.38)$$

$$\delta\rho^L(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) = \frac{3}{\pi\mu^2\omega^2} |\mathbf{E}^L|^2 \delta^2\mathbf{k}. \quad (7.39)$$

où :

$$\begin{aligned} m = -2 : \quad \mathbf{E}^R(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) &\propto \sum_{n=0}^1 \sqrt{r_n} e^{ik_{sp}r_n} \{(ie^{i\theta_p})^{-2} J_{-2}(V) + J_0(V)\} \mathbf{R}, \\ \mathbf{E}^L(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) &\propto \sum_{n=0}^1 \sqrt{r_n} e^{ik_{sp}r_n} \{(ie^{i\theta_p})^{-2} J_{-2}(V) + (ie^{i\theta_p})^{-4} J_{-4}(V)\} \mathbf{L}, \end{aligned} \quad (7.40)$$

et

$$\begin{aligned} m = -3 : \quad \mathbf{E}^R(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) &\propto \sum_{n=0}^1 \sqrt{r_n} e^{ik_{sp}r_n} \{(ie^{i\theta_p})^{-1} J_{-1}(V) + (ie^{i\theta_p})^{-3} J_{-3}(V)\} \mathbf{R}, \\ \mathbf{E}^L(\mathbf{k}, \mathbf{r}_p) &\propto \sum_{n=0}^1 \sqrt{r_n} e^{ik_{sp}r_n} \{(ie^{i\theta_p})^{-3} J_{-3}(V) + (ie^{i\theta_p})^{-5} J_{-5}(V)\} \mathbf{L}, \end{aligned} \quad (7.41)$$

avec  $\mathbf{V} = k_{sp}\mathbf{r}_p$  et  $\mathbf{k} \approx 0$  (on rappelle que la cartographie LDOS est limitée aux modes de propagation paraxiaux). Les motifs complexes, apparaissant sur chaque état de polarisation, peuvent être modélés selon la même règle de sélection OAM que celle démontrée précédemment ( $l = m$  et  $l = m + 2s_{\pm}$ ). Les simulations sur la Fig. 7.16 reproduisent fidèlement les données expérimentales. Dans le cas des polarisations circulaires par exemple, on observe pour  $m = -2$  un faisceau intense au centre selon  $\mathbf{R}$  et un minimum pour  $\mathbf{L}$ . Pour  $m = -3$ , le mode  $\mathbf{L}$  correspond effectivement à un vortex d'ordre supérieur comparé à  $\mathbf{R}$ . Des écarts dans l'orientation des motifs s'expliquent par des erreurs expérimentales telles qu'un désalignement de la fibre de détection APD par rapport à l'axe optique. Ils peuvent également provenir des polariseurs dont les axes sont connus avec une incertitude de  $\pm 5^\circ$ . De plus, la source d'excitation a été théoriquement modélisée comme un dipôle purement horizontal. Comme mentionné précédemment, dans la pratique, les pointes SNOM à ouverture peuvent induire une excitation dipolaire légèrement hors-plan qui a été négligée dans les simulations et peut contribuer aux différences observées entre les simulations et les mesures.

**Composante normale de la LDOS partielle** En effet, bien que la composante plasmon hors-plan soit beaucoup plus forte que la composante dans le plan, nous avons montré précédemment qu'une pointe SNOM à ouverture sonde principalement

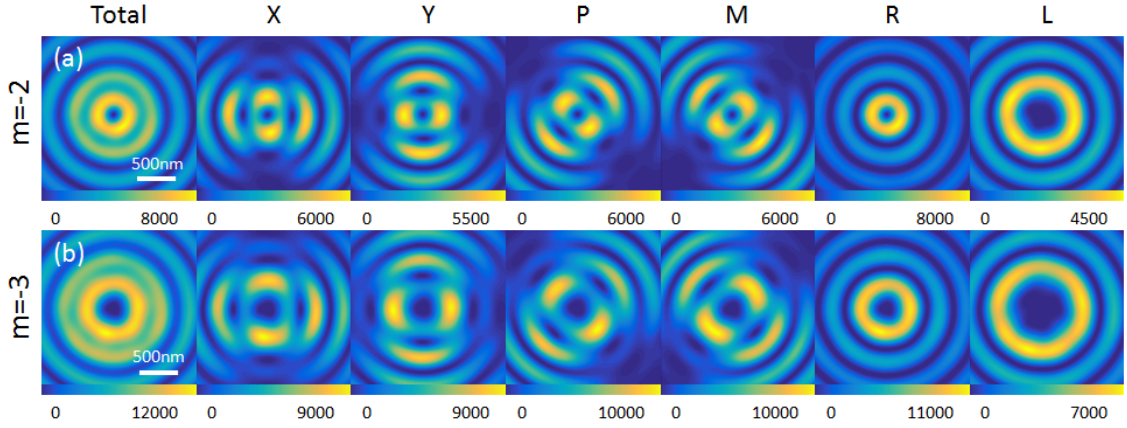


FIGURE 7.17 – Simulations de la LDOS partielle projetée sur l’orientation d’un dipôle purement vertical et associée aux cavités plasmoniques spirales (a)  $m = -2$  et (b)  $m = -3$ . Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

la contribution dans le plan de la LDOS partielle. De plus, la LDOS partielle relative à un dipôle électrique purement hors-plan est associé à des vortex qui diffèrent fortement des résultats expérimentaux. Lorsque la cavité est illuminée avec un dipôle électrique d’orientation hors-plan  $\boldsymbol{\mu} = \mu \hat{r}$ , la LDOS partielle est de la forme :

$$m = -2 : \quad \delta\rho_{\perp}^R(\mathbf{k} \approx 0, \mathbf{r}_p) \propto \left| \sum_n \mu \sqrt{r_n} e^{ik_{sp}r_n} \right|^2 J_{-1}^2(V), \quad (7.42)$$

$$\delta\rho_{\perp}^L(\mathbf{k} \approx 0, \mathbf{r}_p) \propto \left| \sum_n \mu \sqrt{r_n} e^{ik_{sp}r_n} \right|^2 J_{-3}^2(V). \quad (7.43)$$

et

$$m = -3 : \quad \delta\rho_{\perp}^R(\mathbf{k} \approx 0, \mathbf{r}_p) \propto \left| \sum_n \mu \sqrt{r_n} e^{ik_{sp}r_n} \right|^2 J_{-2}^2(V), \quad (7.44)$$

$$\delta\rho_{\perp}^L(\mathbf{k} \approx 0, \mathbf{r}_p) \propto \left| \sum_n \mu \sqrt{r_n} e^{ik_{sp}r_n} \right|^2 J_{-4}^2(V). \quad (7.45)$$

La LDOS partielle est décrite par des modes de Bessel distincts dans le cas d’une excitation dipolaire planaire ( $l = m$  et  $m + 2s_{\pm}$ ) et hors-plan ( $l = m + s_{\pm}$ ). La contradiction observée entre les résultats expérimentaux et les simulations représentées sur la Fig. 7.17 confirment que nous pouvons principalement nous concentrer sur la contribution planaire dans la suite de notre travail sur la densité et le flux de chiralité.

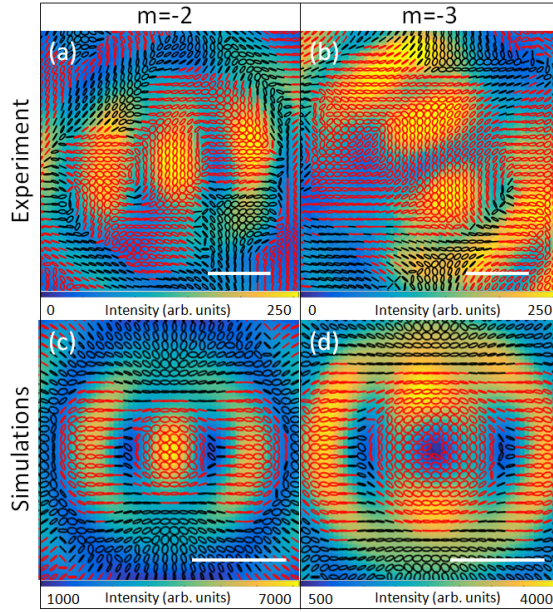


FIGURE 7.18 – Cartes de polarisation locale de LDOS (a-b) expérimentales et (c-d) théoriques. Les ellipses de polarisation sont superposées à l’intensité totale de la LDOS : les couleurs rouges et noires font référence à  $s_+$  et  $s_-$ , respectivement. Barres d’échelle : 500 nm.

## 7.6.2 Polarisation locale de LDOS

La reconstruction spatiale des propriétés vectorielles de la LDOS est réalisée à l’aide des quatre paramètres de Stokes, calculés à partir des cartes de LDOS selon :

$$S_0 \propto \delta\rho^X + \delta\rho^Y, \quad (7.46)$$

$$S_1 \propto \delta\rho^X - \delta\rho^Y, \quad (7.47)$$

$$S_2 \propto \delta\rho^P - \delta\rho^M, \quad (7.48)$$

$$S_3 \propto \delta\rho^L - \delta\rho^R. \quad (7.49)$$

Nous en déduisons, en chaque point de l’espace, les caractéristiques de l’ellipse de polarisation que nous juxtaposons aux cartes d’intensité de LDOS, comme montré sur la Fig. 7.18. Cette représentation définit la polarisation locale de LDOS. Elle permet d’identifier les positions du dipôle pour lesquelles la probabilité d’émission est élevée et de manière simultanée, la polarisation associée. Qualitativement, la polarisation locale dans chaque lobe de la LDOS concorde avec les simulations. Pour  $m = -2$ , le spot central présente en effet un état proche de la polarisation circulaire gauche, et évolue de la polarisation  $\mathbf{X}$  à  $\mathbf{R}$  dans les lobes latéraux. Pour  $m = -3$ , nous retrouvons un minimum au centre entouré de lobes polarisés selon  $\mathbf{L}$ . La polarisation locale de LDOS permet de suivre spatialement l’évolution de  $\varepsilon$ ,  $\beta$  et  $s_{\pm}$  en même temps que la probabilité d’émission de la source. Elle présente donc un intérêt pratique pour la conception de systèmes optiques polarisés et l’étude des interactions lumière-matière.

En résumé, cette analyse polarimétrique de la LDOS révèle la capacité des spirales à produire des modes vortex d'OAM et de polarisations contrôlés. La détection de vortex d'ordres élevés démontre également la sensibilité et la robustesse de notre technique expérimentale. Ainsi, la polarisation locale de LDOS constitue une approche complémentaire aux mesures de LDOS conventionnelles basées sur la durée de vie, parce qu'elle fournit des connaissances supplémentaires sur les canaux d'émission disponibles dans un environnement chiral, et cela grâce à une cartographie simultanée de l'intensité et de la polarisation des modes de cavités.

## 7.7 Densité et flux de chiralité de LDOS

Passons maintenant à l'examen de la densité de chiralité  $\chi$  et du flux de chiralité  $\Phi$ . Bien que nous sondons uniquement la LDOS en champ lointain, nous verrons que notre approche permet d'extraire des propriétés chirales en champ proche. Lorsque  $\chi$  et  $\Phi$  caractérisent la LDOS radiative, c'est-à-dire les modes se propageant en espace libre, ils seront appelés densité et flux de chiralité en champ lointain. En revanche, nous nous référons à la chiralité en champ proche quand ils décrivent les modes plasmoniques confinés à la surface de la cavité.

### 7.7.1 Notion de densité et de flux de chiralité

Tang et Cohen ont récemment proposé d'utiliser la densité  $\chi$  et le flux de chiralité  $\Phi$ , comme observables de la densité locale de chiralité d'une onde électromagnétique [126]. Initialement introduite par Lipkin, ces deux grandeurs fondamentales de la chiralité optique sont décrites par :

$$\chi = \frac{c}{2\omega} [\mathcal{E} \cdot \nabla \times \mathcal{E} + \mathcal{H} \cdot \nabla \times \mathcal{H}], \quad (7.50)$$

$$\Phi = \frac{c^2}{2\omega} [\mathcal{E} \times (\nabla \times \mathcal{H}) - \mathcal{H} \times (\nabla \times \mathcal{E})], \quad (7.51)$$

avec les champs électromagnétiques réels  $\mathcal{E}(\mathbf{r}, t)$  et  $\mathcal{H}(\mathbf{r}, t)$ . Par analogie avec le théorème de Poynting, ces quantités vérifient l'équation de continuité suivante :

$$\frac{\partial \chi}{\partial t} + \nabla \cdot \Phi = 0. \quad (7.52)$$

En régime monochromatique et après moyennage temporel, ces quantités se simplifient telles que :

$$\chi = \frac{1}{2} \Im(\mathbf{E} \cdot \mathbf{H}^*), \quad (7.53)$$

$$\Phi = -\frac{c}{4} [\Im(\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*) + \Im(\mathbf{H} \times \mathbf{H}^*)], \quad (7.54)$$

où

$$\mathcal{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{\Re(\mathbf{E}(\mathbf{r})e^{-i\omega t} + \mathbf{E}^*(\mathbf{r})e^{i\omega t})}{2}, \quad (7.55)$$

$$\mathcal{H}(\mathbf{r}, t) = \frac{\Re(\mathbf{H}(\mathbf{r})e^{-i\omega t} + \mathbf{H}^*(\mathbf{r})e^{i\omega t})}{2}. \quad (7.56)$$

Plusieurs études ont été consacrées à la signification physique de ces quantités. Elles rapportent notamment que ces grandeurs peuvent être connectées à la densité d'énergie et au vecteur de Poynting [131], aux forces chirales et à l'absorption différentielle de la lumière polarisée circulaire par des matériaux chiraux [126, 101, 143].

### 7.7.2 Mesure de la chiralité en champ lointain

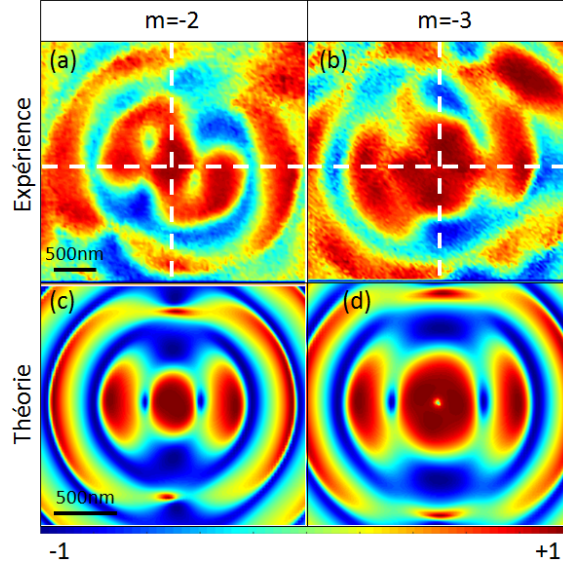


FIGURE 7.19 – Paramètre de Stokes  $S_3$  correspondant aux spirales  $m = -2$  et  $-3$  : (a-b) Résultats expérimentaux. (c-d) Simulations. Echelle de couleur :  $s_{\pm} = \pm 1$  (Intensité (u.a.)).

Calculons les expressions de  $\chi$  et  $\Phi$  en champ lointain. Dans notre expérience, la LDOS a été mesurée sur l'axe optique et l'enveloppe du champ varie lentement sur une distance  $\lambda$ . Nous pouvons donc considérer le régime paraxial dans lequel :

$$\mathbf{H} = \hat{z} \times \mathbf{E}. \quad (7.57)$$

Dans ce régime, la densité et le flux de chiralité s'écrivent alors :

$$\chi = -\frac{1}{2} \Im(\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*) \cdot \hat{z} = -\frac{S_3}{2}, \quad (7.58)$$

$$\Phi = -\frac{c}{2} \Im(\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*) \cdot \hat{z} = c\chi\hat{z} = -c\frac{S_3}{2}\hat{z}, \quad (7.59)$$

où  $S_3 = |\mathbf{E} \cdot \mathbf{L}|^2 - |\mathbf{E} \cdot \mathbf{R}|^2 \propto (\delta\rho^{\mathbf{L}} - \delta\rho^{\mathbf{R}})$  correspond au paramètre de Stokes appliqué à la LDOS. Ce résultat établit le lien entre la mesure de la LDOS et la chiralité, c'est à dire la capacité de la cavité à "dissiper" la chiralité pour une position donnée de l'émetteur [143]. Physiquement, l'extension de la mesure standard du paramètre  $S_3$  à la notion générale de LDOS permet de décrire les positions de l'émetteur pour lesquelles la probabilité d'émettre dans les polarisations circulaires gauche ou droite est la plus élevée. Ici, les mesures présentées sur la Fig. 7.19 montrent que le couplage

aux modes de polarisation circulaire gauche est maximum si l'émetteur est placé au centre ou dans les lobes latéraux représentés en rouge.

L'analyse des Eq. 7.58 et 7.59 montrent d'une part qu'elles satisfont effectivement à la relation de continuité. D'autre part, elles établissent la relation entre les grandeurs de chiralité et une donnée physiquement mesurable qui est le degré de polarisation circulaire. Bien que notre mesure soit basée sur une tomographie de polarisation conventionnelle [145], nous soulignons que la méthode proposée va au-delà de la simple mesure de  $S_3$  de la lumière diffractée par la spirale, mais s'étend à la notion générale de LDOS. Par analogie avec le théorème de Poynting, ce résultat peut être physiquement compris de la manière suivante : comme le dipôle rayonne une polarisation linéaire, le flux de chiralité est initialement nul ( $S_3 = 0$ ). L'interaction avec un système chiral peut engendrer une dissipation de la densité de chiralité et ainsi conduire à des modes optiques sensibles à la polarisation circulaire  $\mathbf{R}$  et  $\mathbf{L}$ , d'où  $S_3 \neq 0$ . Il en résulte un flux de chiralité émergent non-nul.

Les données expérimentales de  $S_3$  pour les cavités  $m = -2$  et  $-3$  (Fig. 7.19(a), (b)) constituent donc des mesures de  $\chi$  et  $\Phi$ . Au centre, on observe un point chaud entouré de lobes latéraux de polarisation  $\mathbf{L}$ . Nous retrouvons cette distribution pour les deux cavités avec, cependant, une répartition plus étendue pour  $m = -3$ . Nous montrons donc que  $\chi$  et  $\Phi$  peuvent être contrôlés via la charge géométrique de la cavité, suivant la même règle de sélection OAM qui régit les modes de Bessel. Théoriquement, les cartes de  $S_3$  sont bien reproduites par les simulations (Fig. 7.19(c-d)). Malgré une rotation du motif par rapport aux mesures, on retrouve un spot central entouré de lobes latéraux polarisé  $\mathbf{L}$ . De manière complémentaire au facteur Purcell chiral, qui caractérise le temps de vie des molécules chirales, cette mesure décrit les positions optimales où un émetteur doit être placé pour obtenir un couplage maximal entre ce dernier et un mode chiral de cavité. De plus, Yoo et al. [132] ont notamment défini le volume du mode chiral à partir de la densité de chiralité maximale  $\chi_{max}$  tel que  $V_C = -\frac{\omega U}{c\chi_{max}}$ , où  $U$  est l'énergie totale de la cavité. En appliquant la mesure de la densité et du flux de chiralité à la LDOS, notre travail pourrait donc servir de ligne directrice pour le positionnement d'émetteurs au sein de cavités chirales pour la conception de sources "superchirales".

### 7.7.3 Chiralité en champ proche

#### Théorème de réciprocité

Pour établir un lien entre la chiralité en champ lointain et en champ proche, nous appliquons le théorème de réciprocité [174]. Nous considérons le cas théorique où l'illumination et la détection sont permutées (Fig. 7.20(a)) : l'échantillon est excité par le dessous, du côté du substrat, tandis qu'une sonde SNOM collecte le signal plasmonique résultant. L'ensemble de l'échantillon est éclairé par un faisceau collimaté ( $\mathbf{k} = 0$ ) et polarisé selon  $\mathbf{X}$ , c'est à dire le mode prépondérant dans la configuration directe, comme discuté précédemment (Fig. 7.16).



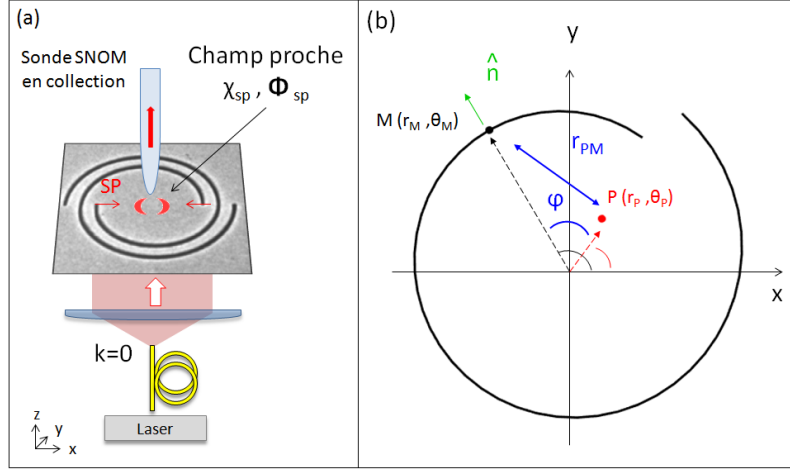


FIGURE 7.20 – (a) Schéma du montage optique en configuration réciproque. (b) Notations utilisées pour le calcul de la composante planaire du champ plasmonique.

Calculons la composante planaire du champ plasmon, issu d'une illumination réciproque de l'échantillon. Nous rappelons que les plasmons, qui se propagent à une interface air/métal (positionné à  $z = 0$ ), sont des ondes transverses magnétiques, définies par les champs électriques et magnétiques suivants :

$$\mathbf{E}_{sp} = \nabla \times \nabla \times (\Psi \hat{z}) = \mathbf{E}_{sp}^{\parallel} + \mathbf{E}_{sp}^{\perp}, \quad (7.60)$$

$$\mathbf{H}_{sp} = -ik \nabla \times (\Psi \hat{z}), \quad (7.61)$$

donnés par [41] :

$$\mathbf{E}_{sp}^{\parallel} = ik_z \nabla_{\parallel} \psi, \quad (7.62)$$

$$\mathbf{E}_{sp}^{\perp} = k_{sp}^2 \psi \hat{z}, \quad (7.63)$$

$$\mathbf{H}_{sp} = \frac{k}{k_z} \hat{z} \times \mathbf{E}_{sp}^{\parallel}, \quad (7.64)$$

où  $\Psi(x, y, z) = \psi(x, y)e^{ik_z z}$  est la fonction de Debye vérifiant l'équation de Helmholtz et  $k^2 = k_{sp}^2 + k_z^2$ . Après diffraction du faisceau incident sur les sillons de la spirale, le champ rayonné au point source  $M$  s'écrit  $\mathbf{E}(M) \propto (\boldsymbol{\mu} \cdot \hat{n})\hat{n} = \mu \cos(\theta)\hat{n}$ , avec  $\hat{n}$  la normale à la fente [138, 41] (voir notations sur la Fig. 7.20(b)). Les plasmons générés se propagent vers le centre de la spirale où ils interfèrent. Ces derniers sont collectés par la sonde SNOM qui, dans le cas d'une pointe à ouverture, détecte principalement la composante planaire  $\mathbf{E}_{sp}^{\parallel}$ . En additionnant la contribution de toutes les sources ponctuelles réparties sur le sillon, nous en déduisons la composante planaire du champ plasmon au point  $P$  :

$$\mathbf{E}_{sp}^{\parallel}(P) \propto \int_{\theta_0}^{\theta_0+2\pi n} \frac{e^{ik_{sp}r}}{r} (\mathbf{E}(M) \cdot \hat{n})(\hat{n} \cdot \hat{r}) \hat{r} dl. \quad (7.65)$$

Comme précédemment, nous considérons que la pointe SNOM est scannée à proximité du centre de la spirale  $\mathbf{r}_p = 0$ . Nous en déduisons :

$$\mathbf{E}_{sp}^{\parallel}(P) = \mathbf{E}_{sp}^{\parallel,R}(P) + \mathbf{E}_{sp}^{\parallel,L}(P), \quad (7.66)$$

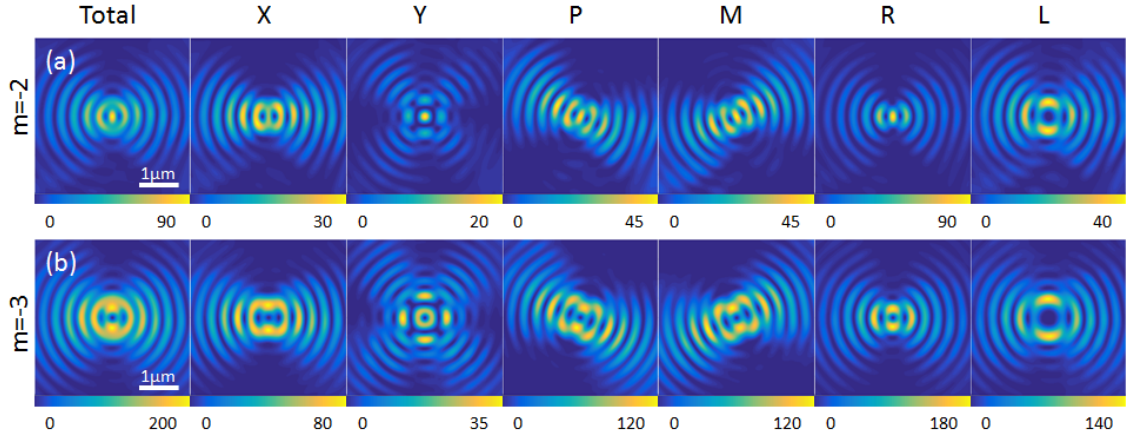


FIGURE 7.21 – Simulations des intensités  $|\mathbf{E}_{sp}^{\parallel} \cdot \mathbf{u}|^2$  (avec  $\mathbf{u}=\mathbf{X}, \mathbf{Y}, \mathbf{P}, \mathbf{M}, \mathbf{R}, \mathbf{L}$ ) pour les spirales (a)  $m = -2$  et (b)  $m = -3$ . Echelle de couleur : Intensité (u.a.).

avec :

$$\mathbf{E}_{sp}^{\parallel, S}(P) \propto \sum_n \frac{\mu}{4\pi\sqrt{2}} \sqrt{r_n} e^{ik_{sp}r_n} \{(ie^{i\theta_p})^m J_m(V) + (ie^{i\theta_p})^{m-2s_{\pm}} J_{m-2s_{\pm}}(V)\} \mathbf{S}, \quad (7.67)$$

où  $\mathbf{V} = k_{sp}\mathbf{r}_p$  et  $\mathbf{S}=\mathbf{L}$  ou  $\mathbf{R}$  ( $s_{\pm} = -1$ ). Le signal plasmonique  $|\mathbf{E}_{sp}^{\parallel} \cdot \mathbf{u}|^2$  collecté par la pointe SNOM est simulé sur la Fig. 7.21(a-b) pour les 2 spirales  $m = -2$  et  $-3$ .

D'une part, l'équivalence entre l'Eq. 7.19-7.20 et l'Eq. 7.67 corrobore nos mesures de LDOS partielles. Nous trouvons que la composante planaire du champ plasmonique est décrite avec les mêmes modes de Bessel obtenues pour la LDOS en illumination directe (SNOM en mode excitation), ce qui explique les fortes similitudes entre les cartes d'intensité en champ proche et en champ lointain. Les mesures expérimentales de LDOS partielles en illumination directe décrivent effectivement les emplacements de l'émetteur où le couplage aux modes de polarisation circulaire est maximal. D'autre part, nous allons exploiter cette propriété pour discuter des propriétés chirales des modes plasmoniques en champ proche à l'aide des mesures de LDOS en champ lointain.

### Densité et flux de chiralité en champ proche

On peut remarquer que les champs magnétiques  $\mathbf{H}_{sp}$  (Eq. 7.64) et  $\mathbf{H} = \hat{z} \times \mathbf{E}$  (Eq. 7.57 en régime paraxial) présentent la même dépendance vis-à-vis du champ électrique. Cette similitude suggère qu'il existe un lien entre les propriétés chirales en champ lointain et en champ proche. Une récente étude théorique a notamment rapporté que  $\Phi$  peut être utilisé comme une observable en champ lointain pour caractériser le champ proche dans des milieux dispersifs avec pertes [143]. Nous en fournissons ici la démonstration expérimentale. Dans le cas présent, la chiralité en champ proche est liée aux modes plasmoniques confinés à la surface de la cavité et seront notés  $\chi_{sp}$  et  $\Phi_{sp}$ .

Premièrement, nous trouvons que la densité de chiralité est donnée par :

$$\chi_{sp} = -\frac{k}{2} \Im \left( \frac{(\mathbf{E}_{sp}^{\parallel} \times \mathbf{E}_{sp}^{*\parallel})}{k_z} \cdot \hat{z} \right), \quad (7.68)$$

où  $\mathbf{E}_{sp}^{\parallel}$  est le champ plasmon détecté dans le montage réciproque. A un facteur  $k_z$  près, on trouve que  $\chi_{sp}$  s'exprime comme  $\chi$  (Eq. 7.58) c'est à dire comme la partie imaginaire du produit vectoriel du champ. De plus, en raison de l'équivalence entre  $\mathbf{E}$  (Eq. 7.19-7.20) et  $\mathbf{E}_{sp}^{\parallel}$  (Eq. 7.67) (théorème de réciprocité), les propriétés de  $\chi_{sp}$ , associée aux plasmons de surface, peuvent donc se déduire à partir  $\chi$ , mesuré pour la LDOS radiative.

Deuxièmement, les composantes normales et planaires du flux de chiralité  $\Phi_{sp} = \Phi_{sp}^{\perp} + \Phi_{sp}^{\parallel}$  se déduisent de la manière suivante :

$$\Phi_{sp}^{\perp} = -\frac{c}{4} \left( (\mathbf{E}_{sp}^{\parallel} \times \mathbf{E}_{sp}^{*\parallel}) \left( 1 + \left( \frac{k}{k_z} \right)^2 \right) \right), \quad (7.69)$$

$$\Phi_{sp}^{\parallel} = -\frac{c}{2} \Im \left( \mathbf{E}_{sp}^{\parallel} \times \mathbf{E}_{sp}^{*\perp} \right). \quad (7.70)$$

De nouveau, nous trouvons que la connaissance sur  $\mathbf{E}_{sp}^{\parallel}$  (soit  $\mathbf{E}$ ) fournit une description complète de la composante normale  $\Phi_{sp}^{\perp}$ . Ce dernier s'exprime de la même manière que  $\Phi$  (Eq. 7.59), à une constante  $1 + \left( \frac{k}{k_z} \right)^2$  près. Par conséquent, les mesures du paramètre  $S_3$  (Fig. 7.19) constituent également une cartographie du flux de chiralité en champ proche (dans la direction de propagation). En cartographiant la LDOS en champ lointain, on peut donc aussi capturer les caractéristiques spatiales de la densité de chiralité et du flux (paraxial) liés aux plasmons.

En outre, cette propriété nous permet d'appliquer le concept de polarisation locale de LDOS, représentée sur la Fig. 7.18, à l'étude de la chiralité optique des plasmons. Plus précisément, en suivant les variations spatiales de l'ellipticité  $\varepsilon$ , on peut contrôler l'évolution de  $\chi$  et  $\Phi$  en fonction de l'intensité des modes de la cavité. Ainsi, cette représentation permet de déterminer les positions du dipôle pour lesquelles la probabilité d'émission et de dissipation de la chiralité en champ lointain sont les plus élevées. Elle permet également d'estimer qualitativement l'évolution des propriétés chirales des plasmons.

Finalement, nous avons révélé que les principales caractéristiques chirales du signal plasmonique en champ proche peuvent être capturées par le biais de mesures polarimétriques en champ lointain. Bien qu'expérimentalement nous nous sommes concentrés sur les modes propagatifs, le théorème de réciprocité nous a permis de caractériser la densité et le flux de chiralité (dans la direction de propagation) associés aux plasmons.

Nous devrions préciser que la détermination de la composante transversale  $\Phi_{sp}^{\parallel}$  nécessite de connaître  $\mathbf{E}_{sp}^{\perp}$ , qui n'est pas sondé ici. La caractérisation de la cavité avec

un dipôle vertical, comme celui généré précédemment par une sonde active contenant plusieurs NV, permettrait d'accéder à  $\delta\rho^\perp$  et  $\mathbf{E}_{sp}^\perp$ .

#### 7.7.4 Onde plasmonique planaire rétro-réfléchi sur la source dipolaire

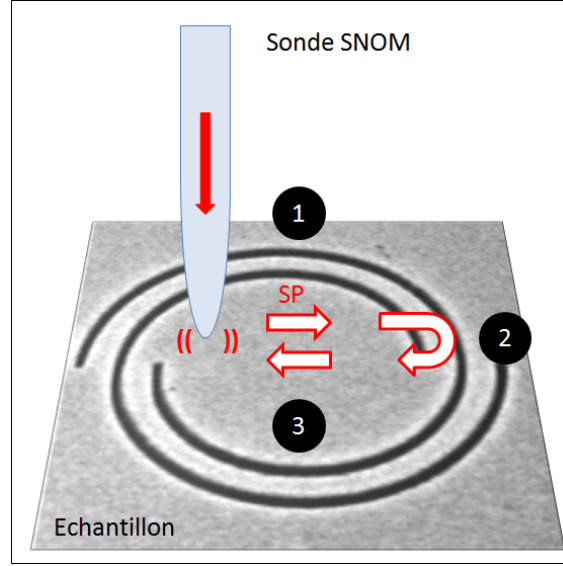


FIGURE 7.22 – Illustration du mécanisme de génération et de rétro-réflexion des plasmons de surface sur la pointe SNOM.

Dans un souci de clarté, nous effectuons à présent une analyse théorique afin de confirmer le fait que, dans notre étude,  $\chi_{sp}$  et  $\Phi_{sp}$  se rapportent aux plasmons et non pas à la grandeur de LDOS totale (nous rappelons que  $\chi$  et  $\Phi$  caractérisent la LDOS en champ lointain). Pour cela, nous calculons le champ plasmonique rétro-réfléchi sur la pointe SNOM comme illustré sur la Fig. 7.22. En effet, la LDOS totale, qui traduit des interactions radiatives et non-radiatives avec la cavité, peut être déduite de la puissance rayonnée par le dipôle sur lui-même comme celle produite par un champ plasmon rétro-réfléchi par les sillons [135, 142]. Les différentes étapes de cette rétro-réflexion sont illustrées sur la Fig. 7.22 : (1) La source ponctuelle ( $\boldsymbol{\mu}_1 = \mu\hat{x}$ ) située à la position  $P$  excite des plasmons à la surface de la spirale. (2) Ces derniers diffractent sur les sillons de la structure au point  $M$  dont le champ associé s'écrit  $(\mathbf{E}_2(M) \cdot \hat{n})\hat{n}$  avec :

$$\mathbf{E}_2(M) \propto \frac{e^{ik_{sp}r}}{\sqrt{|\mathbf{r}|}}(\boldsymbol{\mu}_1 \cdot \hat{r})\hat{r} = \frac{e^{ik_{sp}r}}{\sqrt{|\mathbf{r}|}}\mu \cos(\theta)\hat{r}. \quad (7.71)$$

(3) Enfin, le champ plasmon rétro-réfléchi sur l'émetteur au point  $P$ , proche du centre, peut être calculé en additionnant la contribution de toutes les sources ponc-

tuelles réparties sur la spirale :

$$\mathbf{E}_3^{\parallel}(P) \propto \sum_n \frac{\mu}{2\sqrt{2}} \sqrt{r_n} e^{i2k_{sp}r_n} \oint d\varphi e^{i2k_{sp}r_p \cos(\varphi)} \{(e^{2im(\theta_p+\varphi)} + e^{2i(m+1)(\theta_p+\varphi)})\mathbf{R} + (e^{2im(\theta_p+\varphi)} + e^{2i(m-1)(\theta_p+\varphi)})\mathbf{L}\}. \quad (7.72)$$

Nous en déduisons le champ plasmon rétro-réfléchi  $\mathbf{E}_3^{\parallel}(P) = \mathbf{E}_3^{\parallel,R}(P) + \mathbf{E}_3^{\parallel,L}(P)$  où :

$$\mathbf{E}_3^{\parallel,S}(P) \propto \sum_n \frac{\mu}{4\pi\sqrt{2}} \sqrt{r_n} e^{i2k_{sp}r_n} \{(ie^{i\theta_p})^{2m} J_{2m}(2V) + (ie^{i\theta_p})^{2(m-s_{\pm})} J_{2(m-s_{\pm})}(2V)\}\mathbf{S}, \quad (7.73)$$

avec  $\mathbf{V} = k_{sp}\mathbf{r}_p$ . L'Eq. 7.73 démontre que la LDOS totale est régie par une règle de sélection OAM qui n'autorise que les modes de Bessel avec  $l = 2m$  et  $2(m - s_{\pm})$ . Ces ordres sont clairement différents de ceux trouvés dans les Eq. 7.19-7.20 et l'Eq. 7.67. D'une part, la contradiction entre Eq. 7.73 et Eq. 7.67 confirme nos résultats : en appliquant le théorème de réciprocité, on caractérise la chiralité de la composante planaire des plasmons de surface qui doit être clairement distinguée du champ rétro-réfléchi, intervenant dans la LDOS totale.

D'autre part, cette analyse met en évidence l'influence du champ (rétro-réfléchi ou localisé) à proximité des sillons et confirme l'intérêt des plasmons de surface délocalisés pour cartographier la LDOS optique. En effet, comme nos données expérimentales diffèrent fortement du vortex optique prédit dans l'Eq. 7.73, nous pouvons conclure que le champ du dipôle n'est pas affectée par la rétro-réflexion des plasmons. Par conséquent, le champ émis peut être considéré comme constant pendant la mesure autour de  $r_p = 0$  [142, 157]. Notre travail diffère radicalement de celui de Hashiyada et al. qui se concentrent sur les plasmons localisés de sorte que le champ source peut être perturbé [145].

**Bilan** Au cours de cette étude, nous avons appliqué la mesure de la chiralité optique au concept de LDOS associé à des cavités plasmoniques spirales. En sondant la polarisation de la LDOS et en appliquant le théorème de réciprocité, nous avons démontré que le degré de polarisation circulaire peut décrire les modes de cavité en champ lointain et servir à extraire les caractéristiques chirales des plasmons en champ proche. Nous avons révélé que la LDOS mesurée en champ lointain peut être utilisée comme une observable pour explorer le couplage chiral des plasmons de surface via l'interaction avec la structure. La méthode ainsi proposée pourrait aider au positionnement des molécules dans les systèmes optiques chiraux afin d'optimiser leur réponse chirale.

## 7.8 Conclusion et perspectives

Dans ce dernier chapitre, nous avons relié la chiralité optique aux processus d'interaction lumière-matière. D'une part, nous avons montré qu'une cavité plasmonique spirale possède une LDOS partielle chirale. Au moyen d'un SNOM en mode illumination combiné avec une analyse polarimétrique, nous avons mis en évidence que les

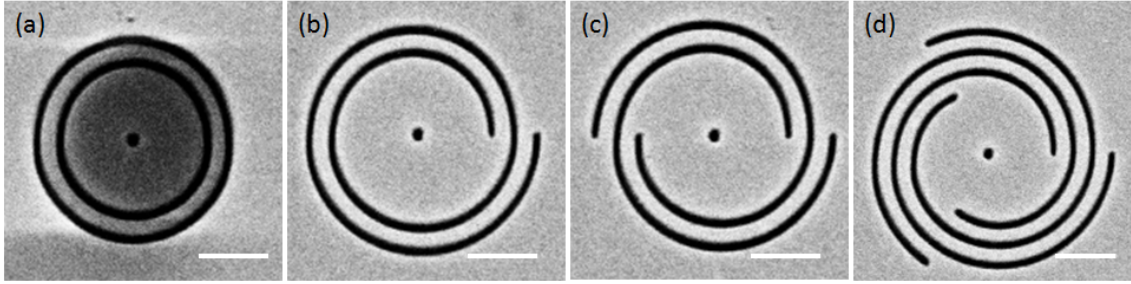


FIGURE 7.23 – Images MEB de cavités plasmoniques spirales au centre desquelles a été pratiqué un trou. L'épaisseur du film est de 200 nm. Barres d'échelle : 2  $\mu$ m.

modos de cavité sont sensibles à la polarisation circulaire et peuvent être façonnés par la charge géométrique de la spirale. À l'aide d'une pointe SNOM classique à ouverture puis d'une sonde active constituée d'un nanodiamant contenant des centres NV, nous avons démontré que ce comportement chiral se manifeste à la fois pour la composante planaire et normale de la LDOS partielle. D'autre part, nous avons introduit le concept de polarisation locale de LDOS et avons proposé une méthode pour identifier simultanément les positions de l'émetteur où la LDOS est élevée et la polarisation du canal d'émission. Enfin, nous avons connecté le concept de LDOS à la densité et au flux de chiralité. Nous avons discuté comment le paramètre de Stokes  $S_3$  peut constituer une observable mesurable de ces paramètres pour la LDOS partielle radiative. En appliquant le théorème de réciprocité, nous avons démontré que cette observable peut aider à décrire la chiralité optique liée aux plasmons de surface. Cette technique offre donc des perspectives intéressantes dans les domaines de la manipulation optique [172, 173, 114] ou des communications optiques [5]. De plus avec cette possibilité de déplacer un émetteur quantique dans un environnement chiral, nous pouvons envisager de concevoir une source à photon unique compacte qui pourrait générer des vortex optiques polarisés. Dans cette perspective, nous avons élaboré les cavités plasmoniques ci-dessus dont les centres ont été percés afin d'accueillir un nano-diamant contenant un centre NV unique (Fig. 7.23). Ce projet est actuellement à l'étude.



## Annexe D

# Complément d'analyse sur la cavité plasmonique circulaire

Cette annexe est consacrée à l'analyse polarimétrique de la LDOS mesurée sur une cavité plasmonique circulaire. Dans le corps du manuscrit, nous avons principalement discuté de sa LDOS partielle analysée dans les bases de polarisations circulaires.

D'une part, nous complétons ces résultats avec la présentation, sur la Fig. D.1, de la LDOS projetée notamment sur les états de polarisation linéaires **X**, **Y**, **P**, **M**. Nous observons un accord remarquable entre les données expérimentales et théoriques. D'autre part, ces images sont traitées de manière à déterminer les paramètres de Stokes correspondant (Fig. D.2). Enfin, à partir de ces derniers, nous juxtaposons la distribution spatiale des ellipses de polarisation à l'image de la LDOS qui n'est pas analysée en polarisation (Fig. D.3).

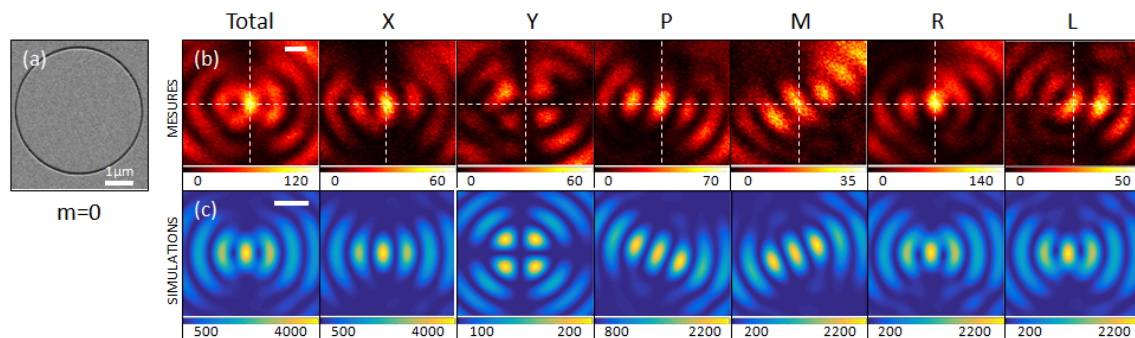


FIGURE D.1 – (a) Image MEB de l'échantillon. (b) Données expérimentales de la LDOS partielle planaire. (c) Simulations. L'analyse en polarisation est effectuée comme indiqué dans l'entête. Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).



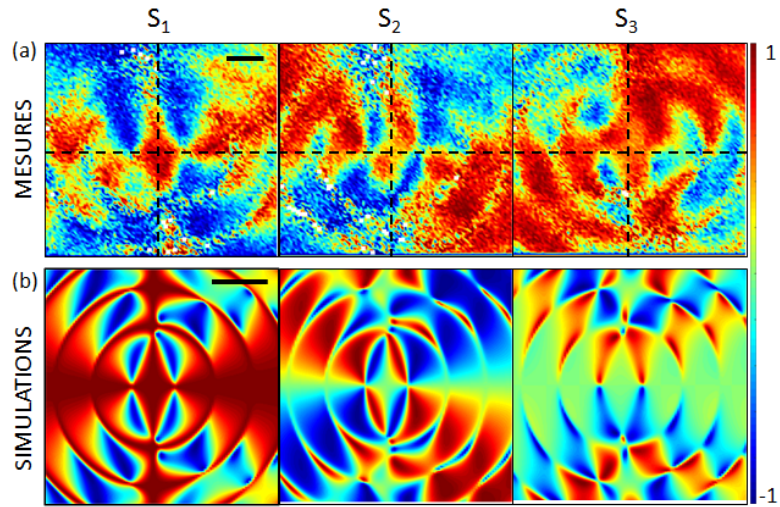


FIGURE D.2 – Paramètres de Stokes appliqués à la LDOS optique : (a) Données expérimentales. (b) Simulations. Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

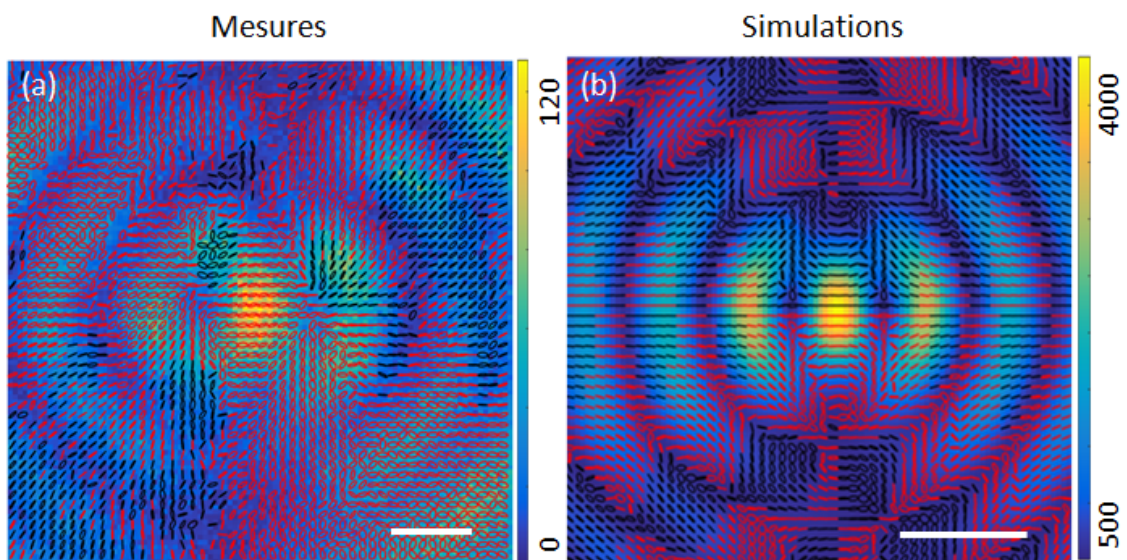


FIGURE D.3 – Cartes de polarisation locale de LDOS (a) expérimentales et (b) théoriques. Les ellipses de polarisation sont superposées à l'intensité totale de la LDOS : les couleurs rouges et noires font référence à  $s_+$  et  $s_-$ , respectivement. Barres d'échelle : 500 nm. Echelles de couleur : Intensité (u.a.).

## Annexe E

# Complément d'analyse sur la cavité plasmonique spirale $m=+1$

Cette annexe est consacrée à l'analyse polarimétrique de la LDOS mesurée sur une cavité plasmonique spirale de charge géométrique  $m=1$ . Dans le corps du manuscrit, nous avons principalement discuté de sa LDOS partielle analysée dans les bases de polarisations circulaires.

D'une part, nous complétons ces résultats avec la présentation, sur la Fig. E.1, de la LDOS projetée notamment sur les états de polarisation linéaires  $\mathbf{X}$ ,  $\mathbf{Y}$ ,  $\mathbf{P}$ ,  $\mathbf{M}$ . Nous observons également un accord remarquable entre les données expérimentales et théoriques. D'autre part, ces images sont traitées de manière à déterminer les paramètres de Stokes correspondant (Fig. E.2). Enfin, à partir de ces derniers, nous juxtaposons la distribution spatiale des ellipses de polarisation à l'image de la LDOS non analysée en polarisation (Fig. E.3).

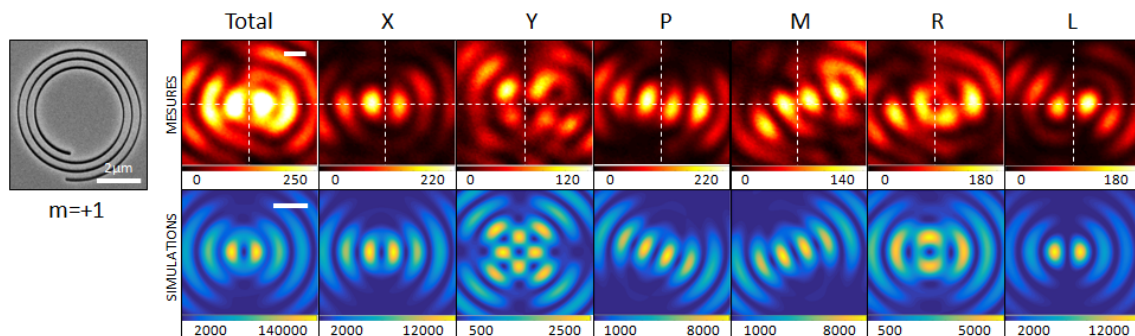


FIGURE E.1 – (a) Image MEB de l'échantillon. (b) Données expérimentales de la LDOS partielle planaire. (c) Simulations. L'analyse en polarisation est effectuée comme indiqué dans l'entête. Barres d'échelle : 500 nm. Echelle de couleur : Intensité (u.a.).

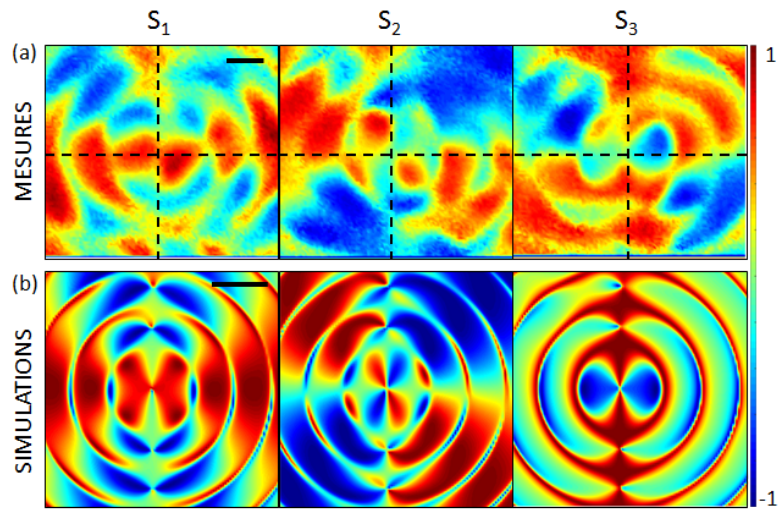


FIGURE E.2 – Paramètres de Stokes appliqués à la LDOS optique : (a) Données expérimentales. (b) Simulations. Barres d'échelle : 500 nm. Echelle de couleur : Intensité (u.a.).

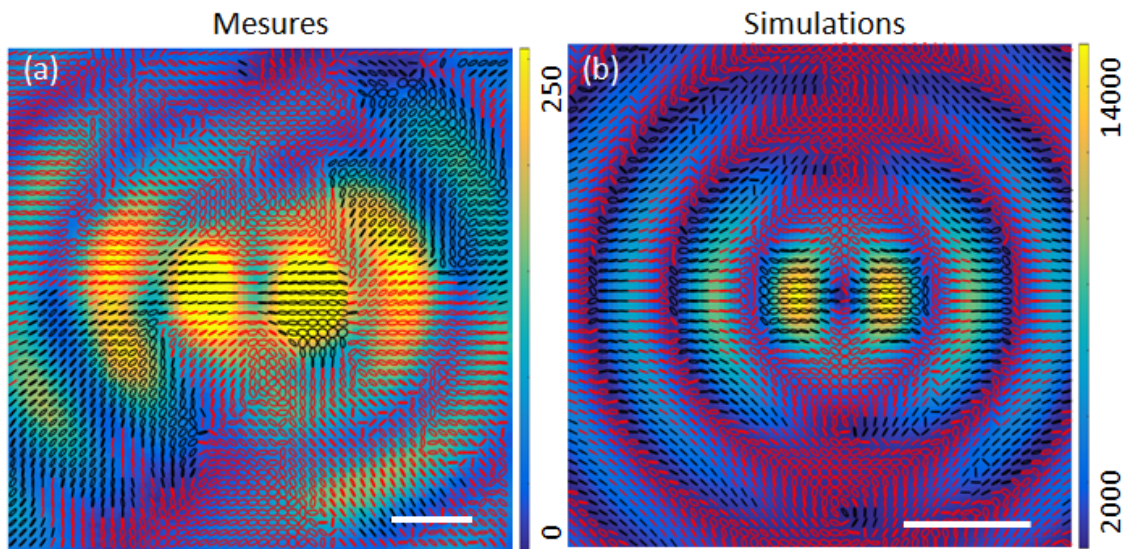


FIGURE E.3 – Cartes de polarisation locale de LDOS (a) expérimentales et (b) théoriques. Les ellipses de polarisation sont superposées à l'intensité totale de la LDOS : les couleurs rouges et noires font référence à  $s_+$  et  $s_-$ , respectivement. Barres d'échelle : 500 nm.

# Conclusion générale

L'objectif de ce projet de thèse a été de caractériser la chiralité optique dans des systèmes plasmoniques. Expérimentalement, nous avons exploité les interactions spin-orbite la lumière pour manipuler ses différents degrés de liberté par l'intermédiaire des plasmons de surface. Plus précisément, nous avons mis en oeuvre un polariseur circulaire plasmonique dont le moment angulaire de spin est déterminé par la direction de propagation des plasmons. Nous avons également élaboré des lentilles de vortex plasmoniques dont l'intensité et le moment angulaire orbital sont régis par la chiralité de la lumière incidente et de la cavité spirale.

La mise en évidence de ces effets chiroptiques a été accomplie grâce à une étude détaillée des modes de polarisation. Selon les besoins de l'étude, elle a été mise en oeuvre soit à l'aide un montage optique opérant en champ lointain, soit au moyen d'un microscope optique à champ proche. En particulier, nous avons montré que l'imagerie LRM était un outil particulièrement adapté pour l'étude polarimétrique des vortex plasmoniques. Nous avons également démontré le potentiel du SNOM pour sonder la LDOS optique dans un environnement chiral. Pour appuyer nos mesures expérimentales, nous avons comparé de manière systématique nos résultats avec des simulations analytiques basées sur un modèle multidipolaire.

Théoriquement, nous avons étendu les concepts issus du domaine d'étude de la chiralité aux structures plasmoniques. D'une part, nous avons montré que le formalisme des matrices de Jones chirales permettait de révéler de manière non-invasive les brisures de symétrie 2D et 3D au sein des échantillons. D'autre part, nous avons introduit une généralisation du modèle de Kuhn pour décrire les milieux de chiralité mixte. Enfin, nous avons appliqué les figures de mérite de la chiralité aux interactions lumière-matière en établissant théoriquement le lien entre la densité et le flux de chiralité et la LDOS optique.

Bien que les résultats obtenus au cours de ce projet constituent des preuves de principe pour la mise en évidence de phénomènes chiraux dans les systèmes plasmoniques, ce travail soulève de nombreuses questions et de nombreux points nécessitent d'être améliorés. Dans un premier temps, nous avons vu que les défauts de fabrication des échantillons pouvaient engendrer une réponse chirale importante (Chapitre 4). Or, en pratique le montage n'est pas parfaitement aligné et les systèmes optiques et polarisant ne sont pas idéaux. Ces facteurs engendrent des incertitudes de mesures qu'il est donc indispensable de minimiser. Celles-ci pourraient être tout d'abord quantifiées en déterminant la matrice de Mueller associé aux erreurs ex-

périmentales, en suivant par exemple la méthode détaillée dans [175], pour ensuite pouvoir optimiser la précision du montage.

Dans un second temps, nous avons démontré au Chapitre 5 le transfert du moment linéaire des plasmons de surface en polarisation circulaire. Au delà des perspectives déjà mentionnées tout au long de ce manuscrit, l'étude des dispositifs plasmoniques en vue de réaliser des composants optiques miniaturisés pourraient être complétée par une analyse spectrométrique afin de caractériser la dépendance du degré de polarisation circulaire vis à vis de la longueur d'onde. De plus, bien que le modèle simple multi-dipolaire utilisé au cours de cette recherche nous a permis de comprendre les processus physiques mis en jeu, l'optimisation des performances des dispositifs pourrait s'appuyer sur des outils numériques pour la conception des nanostructures et pour tenir compte des couplages interdipolaires. Enfin, l'implémentation de ces structures dans des circuits photoniques nécessite de résoudre le problème de pertes liés aux plasmons de surface [23]. Pour surmonter cet obstacle, les scientifiques étudient des systèmes hybrides combinant la plasmonique et des guides d'ondes diélectriques [176]. Au sein de notre équipe, mon prédécesseur Q. Jiang a notamment initié ce travail par la démonstration du couplage inverse de SHEL à l'aide d'antennes métalliques  $\Lambda$  pour orienter des modes guidés [105].

En outre, notre connaissance sur les vortex plasmoniques, présentés au Chapitre 6, pourraient être approfondie en complétant ces données statiques avec des mesures dynamiques. Par exemple, Spektor et al. [177] ont enregistré, par le biais de la *Photo Emission Electron microscopy* (PEEM), l'évolution de vortex en formation (singularités de phase) au sein de cavités spirales. Dans le cadre de notre collaboration avec C. Genet de l'Institut de Science et d'Ingénierie Supramoléculaires, notre groupe envisage notamment, à l'aide d'une technique d'imagerie LRM résolue en temps [178], d'examiner à l'échelle de la femtoseconde la dynamique spatio-temporelle d'un paquet d'onde plasmonique durant la formation d'un vortex.

Enfin, nous avons présenté une preuve de concept sur la mesure de la LDOS optique partielle à l'aide d'une sonde quantique dans un environnement chiral (Chapitre 7). En adaptant notre montage optique pour fonctionner en régime pulsé, nous pourrions alors envisager de sonder la LDOS totale d'une cavité spirale avec un centre NV unique [165]. Examiner l'influence de la chiralité sur le temps de vie d'un émetteur quantique ouvre des perspectives prometteuses dans la mesure du facteur de Purcell chiral pour renforcer les interactions lumière-matière chirales [132], mais également dans la manipulation des sources quantiques intégrées dans des circuits photoniques [179].

# Bibliographie

- [1] Laurence D Barron. *An introduction to chirality at the nanoscale*. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2009.
- [2] Svetlana Boriskina and Nikolay I Zheludev. *Singular and Chiral Nanoplasmonics*. CRC Press, 2014.
- [3] Yang Luo, Cheng Chi, Meiling Jiang, Ruipeng Li, Shuai Zu, Yu Li, and Zheyu Fang. Plasmonic chiral nanostructures : Chiroptical effects and applications. *Advanced Optical Materials*, 2017.
- [4] Mathieu L Juan, Maurizio Righini, and Romain Quidant. Plasmon nano-optical tweezers. *Nature Photonics*, 5(6) :349, 2011.
- [5] Jian Wang. Advances in communications using optical vortices. *Photon. Res.*, 4(5) :B14–B28, Oct 2016.
- [6] Quanbo Jiang. *Réalisation et optimisation de structures plasmoniques pour le couplage directionnel de la lumière*. PhD thesis, Grenoble Alpes, 2016.
- [7] Jonathan Adolf Wilhelm Zenneck. *Wireless telegraphy*. McGraw-Hill Book Company, inc., 1915.
- [8] KA Norton. The physical reality of space and surface waves in the radiation field of radio antennas. *Proceedings of the Institute of Radio Engineers*, 25(9) :1192–1202, 1937.
- [9] Cyriaque Genet and Thomas W Ebbesen. Light in tiny holes. In *Nanoscience And Technology : A Collection of Reviews from Nature Journals*, pages 205–212. World Scientific, 2010.
- [10] Kan Yao and Yongmin Liu. Plasmonic metamaterials. *Nanotechnology Reviews*, 3(2) :177–210, 2014.
- [11] Timothy J Davis, Daniel E Gómez, and Ann Roberts. Plasmonic circuits for manipulating optical information. 2017.
- [12] Pascal Anger, Palash Bharadwaj, and Lukas Novotny. Enhancement and quenching of single-molecule fluorescence. *Physical review letters*, 96(11) :113002, 2006.
- [13] Vincenzo Giannini, Antonio I Fernandez-Dominguez, Susannah C Heck, and Stefan A Maier. Plasmonic nanoantennas : fundamentals and their use in controlling the radiative properties of nanoemitters. *Chemical reviews*, 111(6) :3888–3912, 2011.
- [14] Anika Kinkhabwala, Zongfu Yu, Shanhui Fan, Yuri Avlasevich, Klaus Müllen, and WE Moerner. Large single-molecule fluorescence enhancements produced by a bowtie nanoantenna. *Nature Photonics*, 3(11) :654, 2009.

- [15] Deep Punj, Mathieu Mivelle, Satish Babu Moparthi, Thomas S Van Zanten, Hervé Rigneault, Niek F Van Hulst, Maria F Garcia-Parajo, and Jérôme Wenger. A plasmonic antenna-in-box platform for enhanced single-molecule analysis at micromolar concentrations. *Nature nanotechnology*, 8(7) :512, 2013.
- [16] Peter B Johnson and R-W Christy. Optical constants of the noble metals. *Physical review B*, 6(12) :4370, 1972.
- [17] Eloise Devaux, Thomas W Ebbesen, Jean-Claude Weeber, and Alain Dereux. Launching and decoupling surface plasmons via micro-gratings. *Applied physics letters*, 83(24) :4936–4938, 2003.
- [18] Aurélien Drezet, Cyriaque Genet, Jean-Yves Laluet, and Thomas W Ebbesen. Optical chirality without optical activity : How surface plasmons give a twist to light. *Optics express*, 16(17) :12559–12570, 2008.
- [19] Dieter W Pohl, W Denk, and M Lanz. Optical stethoscopy : Image recording with resolution  $\lambda/20$ . *Applied physics letters*, 44(7) :651–653, 1984.
- [20] Paul Dawson, Frédérique De Fornel, and Jean-Pierre Goudonnet. Imaging of surface plasmon propagation and edge interaction using a photon scanning tunneling microscope. *Physical review letters*, 72(18) :2927, 1994.
- [21] Bo Liedberg, Claes Nylander, and Ingemar Lunström. Surface plasmon resonance for gas detection and biosensing. *Sensors and actuators*, 4 :299–304, 1983.
- [22] Jiri Homola, Sinclair S Yee, and Gunter Gauglitz. Surface plasmon resonance sensors. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 54(1-2) :3–15, 1999.
- [23] Thomas W Ebbesen, Cyriaque Genet, and Sergey I Bozhevolnyi. Surface-plasmon circuitry. *Physics Today*, 61(5) :44, 2008.
- [24] Volker J Sorger, Rupert F Oulton, Ren-Min Ma, and Xiang Zhang. Toward integrated plasmonic circuits. *MRS bulletin*, 37(8) :728–738, 2012.
- [25] Konstantin Yu Bliokh, Francisco J Rodríguez-Fortuño, Franco Nori, and Anatoly V Zayats. Spin-orbit interactions of light. *Nature Photonics*, 9(12) :796, 2015.
- [26] Miles Padgett, Johannes Courtial, and Les Allen. Light’s orbital angular momentum. *Physics Today*, 57(5) :35–40, 2004.
- [27] Marco W Beijersbergen, Les Allen, HELO Van der Veen, and JP Woerdman. Astigmatic laser mode converters and transfer of orbital angular momentum. *Optics Communications*, 96(1-3) :123–132, 1993.
- [28] V. Garcés-Chávez, D. McGloin, M. J. Padgett, W. Dultz, H. Schmitzer, and K. Dholakia. Observation of the transfer of the local angular momentum density of a multiringed light beam to an optically trapped particle. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :093602, Aug 2003.
- [29] Konstantin Y Bliokh, Avi Niv, Vladimir Kleiner, and Erez Hasman. Geome-trodynamics of spinning light. *Nature Photonics*, 2(12) :748, 2008.
- [30] Konstantin Y. Bliokh, Yuri Gorodetski, Vladimir Kleiner, and Erez Hasman. Coriolis effect in optics : Unified geometric phase and spin-hall effect. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :030404, Jul 2008.

- [31] Nir Shitrit, Itay Bretner, Yuri Gorodetski, Vladimir Kleiner, and Erez Hasman. Optical spin hall effects in plasmonic chains. *Nano letters*, 11(5) :2038–2042, 2011.
- [32] Daniel O’connor, Pavel Ginzburg, Francisco J Rodríguez-Fortuño, Greg A Wurtz, and Anatoly V Zayats. Spin–orbit coupling in surface plasmon scattering by nanostructures. *Nature communications*, 5 :5327, 2014.
- [33] Jiao Lin, JP Balthasar Mueller, Qian Wang, Guanghui Yuan, Nicholas Antoniou, Xiao-Cong Yuan, and Federico Capasso. Polarization-controlled tunable directional coupling of surface plasmon polaritons. *Science*, 340(6130) :331–334, 2013.
- [34] Nanfang Yu, Patrice Genevet, Mikhail A Kats, Francesco Aieta, Jean-Philippe Tetienne, Federico Capasso, and Zeno Gaburro. Light propagation with phase discontinuities : generalized laws of reflection and refraction. *science*, 334(6054) :333–337, 2011.
- [35] Dries Vercruyse, Yannick Sonnefraud, Niels Verellen, Fabian B Fuchs, Giuliana Di Martino, Liesbet Lagae, Victor V Moshchalkov, Stefan A Maier, and Pol Van Dorpe. Unidirectional side scattering of light by a single-element nanoantenna. *Nano letters*, 13(8) :3843–3849, 2013.
- [36] Grisha Spektor, Asaf David, Bergin Gjonaj, Guy Bartal, and Meir Orenstein. Metafocusing by a metasprial plasmonic lens. *Nano letters*, 15(9) :5739–5743, 2015.
- [37] Jean-Yves Laluet, Aurélien Drezet, Cyriaque Genet, and Thomas W Ebbesen. Generation of surface plasmons at single subwavelength slits : from slit to ridge plasmon. *New Journal of Physics*, 10(10) :105014, 2008.
- [38] Quanbo Jiang, Aline Pham, Martin Berthel, Serge Huant, Joel Bellessa, Cyriaque Genet, and Aurélien Drezet. Directional and singular surface plasmon generation in chiral and achiral nanostructures demonstrated by leakage radiation microscopy. *ACS photonics*, 3(6) :1116–1124, 2016.
- [39] Quanbo Jiang, Aline Pham, Serge Huant, Joel Bellessa, Cyriaque Genet, and Aurélien Drezet. Highly efficient singular surface plasmon generation by achiral apertures. *Optics letters*, 41(19) :4534–4537, 2016.
- [40] Aurélien Drezet, Andreas Hohenau, Daniel Koller, Andrey Stepanov, H Ditlbacher, Bernhard Steinberger, Franz Rembert Aussenegg, Alfred Leitner, and Joachim Rudolf Krenn. Leakage radiation microscopy of surface plasmon polaritons. *Materials science and engineering : B*, 149(3) :220–229, 2008.
- [41] Oriane Mollet, Guillaume Bachelier, Cyriaque Genet, Serge Huant, and Aurélien Drezet. Plasmonic interferometry : Probing launching dipoles in scanning-probe plasmonics. *Journal of Applied Physics*, 115(9) :093105, 2014.
- [42] Aurélien Drezet and Cyriaque Genet. Imaging surface plasmons : from leaky waves to far-field radiation. *Physical review letters*, 110(21) :213901, 2013.
- [43] F Le Roy-Brehonnet and B Le Jeune. Utilization of mueller matrix formalism to obtain optical targets depolarization and polarization properties. *Progress in Quantum Electronics*, 21(2) :109–151, 1997.



- [44] Nicolas Chevalier. *Sondes actives à base d'un nanocristal semiconducteur unique pour l'optique en champ proche : concept et réalisation*. PhD thesis, Université Joseph-Fourier-Grenoble I, 2005.
- [45] Oriane Mollet. *Sondes actives en champ proche pour la plasmonique et la plasmonique quantique*. PhD thesis, Grenoble, 2012.
- [46] Khaled Karrai and Robert D Grober. Piezoelectric tip-sample distance control for near field optical microscopes. *Applied physics letters*, 66(14) :1842–1844, 1995.
- [47] Marvin Minsky. Microscopy apparatus. *US Patent*, 3013467(695107), 1957.
- [48] R Hanbury Brown and Richard Q Twiss. Correlation between photons in two coherent beams of light. *Nature*, 177(4497) :27–29, 1956.
- [49] H Jeff Kimble, Mario Dagenais, and Leonard Mandel. Photon antibunching in resonance fluorescence. *Physical Review Letters*, 39(11) :691, 1977.
- [50] Frank Diedrich and Herbert Walther. Nonclassical radiation of a single stored ion. *Physical review letters*, 58(3) :203, 1987.
- [51] Aurélien Cuche. *Sondes actives pour l'optique en champ proche à base de nanoparticules isolantes ou de nanodiamants fluorescents*. PhD thesis, Université Joseph-Fourier-Grenoble I, 2009.
- [52] Martin Berthel. *Plasmonique classique et quantique sous pointe optique par microscopie en champ proche*. PhD thesis, Université Grenoble Alpes, 2016.
- [53] Raoul Stöckle, Christian Fokas, Volker Deckert, Renato Zenobi, Beate Sick, Bert Hecht, and Urs P Wild. High-quality near-field optical probes by tube etching. *Applied Physics Letters*, 75(2) :160–162, 1999.
- [54] Raoul Kopelman, Klonimus Lieberman, Aaron Lewis, and Weihong Tan. Evanescent luminescence and nanometer-size light source. *Journal of luminescence*, 48 :871–875, 1991.
- [55] A Gruber, A Dräbenstedt, C Tietz, L Fleury, J Wrachtrup, and C Von Borzyskowski. Scanning confocal optical microscopy and magnetic resonance on single defect centers. *Science*, 276(5321) :2012–2014, 1997.
- [56] Geraldine Dantelle, Abdallah Slablab, Loic Rondin, F Lainé, Frederick Carrel, Philippe Bergonzo, Sandrine Perruchas, Thierry Gacoïn, Francois Treussart, and Jean Francois Roch. Efficient production of nv colour centres in nanodiamonds using high-energy electron irradiation. *Journal of Luminescence*, 130(9) :1655–1658, 2010.
- [57] S Kühn, C Hettich, C Schmitt, J-PH Poizat, and V Sandoghdar. Diamond colour centres as a nanoscopic light source for scanning near-field optical microscopy. *Journal of Microscopy*, 202(1) :2–6, 2001.
- [58] Justyna K Gansel, Michael Thiel, Michael S Rill, Manuel Decker, Klaus Bade, Volker Saile, Georg von Freymann, Stefan Linden, and Martin Wegener. Gold helix photonic metamaterial as broadband circular polarizer. *Science*, 325(5947) :1513–1515, 2009.
- [59] A Papakostas, A Potts, DM Bagnall, SL Prosvirnin, HJ Coles, and NI Zheludev. Optical manifestations of planar chirality. *Physical review letters*, 90(10) :107404, 2003.

- [60] Euan Hendry, T Carpy, J Johnston, M Popland, RV Mikhaylovskiy, AJ Laphorn, SM Kelly, LD Barron, N Gadegaard, and M Kadodwala. Ultrasensitive detection and characterization of biomolecules using superchiral fields. *Nature nanotechnology*, 5(11) :783, 2010.
- [61] AV Rogacheva, VA Fedotov, AS Schwanecke, and NI Zheludev. Giant gyrotropy due to electromagnetic-field coupling in a bilayered chiral structure. *Physical review letters*, 97(17) :177401, 2006.
- [62] VA Fedotov, PL Mladyonov, SL Prosvirnin, AV Rogacheva, Y Chen, and NI Zheludev. Asymmetric propagation of electromagnetic waves through a planar chiral structure. *Physical review letters*, 97(16) :167401, 2006.
- [63] Aline Pham, Martin Berthel, Quanbo Jiang, Joel Bellessa, Serge Huant, Cyriaque Genet, and Aurélien Drezet. Chiral optical local density of states in a spiral plasmonic cavity. *Phys. Rev. A*, 94 :053850, Nov 2016.
- [64] Tuomas Vallius, Konstantins Jefimovs, Jari Turunen, Pasi Vahimaa, and Yuri Svirko. Optical activity in subwavelength-period arrays of chiral metallic particles. *Applied physics letters*, 83(2) :234–236, 2003.
- [65] AS Schwanecke, A Krasavin, DM Bagnall, A Potts, AV Zayats, and NI Zheludev. Broken time reversal of light interaction with planar chiral nanostructures. *Physical review letters*, 91(24) :247404, 2003.
- [66] Makoto Kuwata-Gonokami, Nobuyoshi Saito, Yusuke Ino, Martti Kauranen, Konstantins Jefimovs, Tuomas Vallius, Jari Turunen, and Yuri Svirko. Giant optical activity in quasi-two-dimensional planar nanostructures. *Physical review letters*, 95(22) :227401, 2005.
- [67] E Plum, VA Fedotov, AS Schwanecke, NI Zheludev, and Y Chen. Giant optical gyrotropy due to electromagnetic coupling. *Applied Physics Letters*, 90(22) :223113, 2007.
- [68] Brian K Canfield, Sami Kujala, Kaisa Laiho, Konstantins Jefimovs, Jari Turunen, and Martti Kauranen. Chirality arising from small defects in gold nanoparticle arrays. *Optics Express*, 14(2) :950–955, 2006.
- [69] Aurélien Drezet and Cyriaque Genet. *Reciprocity and optical chirality*. Pan Stanford Publishing, 2014.
- [70] Christoph Menzel, Carsten Rockstuhl, and Falk Lederer. Advanced jones calculus for the classification of periodic metamaterials. *Physical Review A*, 82(5) :053811, 2010.
- [71] NP Armitage. Constraints on jones transmission matrices from time-reversal invariance and discrete spatial symmetries. *Physical Review B*, 90(3) :035135, 2014.
- [72] Martin Berthel, Quanbo Jiang, Camille Chartrand, Joel Bellessa, Serge Huant, Cyriaque Genet, and Aurélien Drezet. Coherence and aberration effects in surface plasmon polariton imaging. *Physical Review E*, 92(3) :033202, 2015.
- [73] Yongkai Wang, Xiaojing Wen, Yu Qu, Li Wang, Rengang Wan, and Zhongyue Zhang. Co-occurrence of circular dichroism and asymmetric transmission in twist nanoslit-nanorod arrays. *Optics express*, 24(15) :16425–16433, 2016.

- [74] S Chandrasekhar. Simple model for optical activity. *American Journal of Physics*, 24 :503–506, 1956.
- [75] VA Fedotov, AS Schwanecke, NI Zheludev, VV Khardikov, and SL Prosvirnin. Asymmetric transmission of light and enantiomerically sensitive plasmon resonance in planar chiral nanostructures. *Nano Letters*, 7(7) :1996–1999, 2007.
- [76] AB Khanikaev, Nihal Arju, Zhiyuan Fan, David Purtseladze, Feng Lu, Jongwon Lee, Paulo Sarriugarte, Martin Schnell, Rainer Hillenbrand, MA Belkin, et al. Experimental demonstration of the microscopic origin of circular dichroism in two-dimensional metamaterials. *Nature communications*, 7 :12045, 2016.
- [77] Atefeh Fazel Najafabadi and Tavakol Pakizeh. Analytical chiroptics of 2d and 3d nanoantennas. *ACS photonics*, 4(6) :1447–1452, 2017.
- [78] Hyeon-Ho Jeong, Andrew G Mark, Tung-Chun Lee, Mariana Alarcón-Correa, Sahand Eslami, Tian Qiu, John G Gibbs, and Peer Fischer. Active nanorheology with plasmonics. *Nano letters*, 16(8) :4887–4894, 2016.
- [79] A Degiron, HJ Lezec, N Yamamoto, and TW Ebbesen. Optical transmission properties of a single subwavelength aperture in a real metal. *Optics Communications*, 239(1-3) :61–66, 2004.
- [80] L Martin-Moreno, FJ Garcia-Vidal, HJ Lezec, KM Pellerin, Tineke Thio, JB Pendry, and TW Ebbesen. Theory of extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays. *Physical review letters*, 86(6) :1114, 2001.
- [81] Oriol Arteaga, John Freudenthal, Baoliang Wang, and Bart Kahr. Mueller matrix polarimetry with four photoelastic modulators : theory and calibration. *Applied optics*, 51(28) :6805–6817, 2012.
- [82] Costas M Soukoulis and Martin Wegener. Past achievements and future challenges in the development of three-dimensional photonic metamaterials. *nature photonics*, 5(9) :523, 2011.
- [83] Ventsislav K Valev, Jeremy J Baumberg, Concita Sibilia, and Thierry Verbiest. Chirality and chiroptical effects in plasmonic nanostructures : fundamentals, recent progress, and outlook. *Advanced Materials*, 25(18) :2517–2534, 2013.
- [84] AV Akimov, A Mukherjee, CL Yu, DE Chang, AS Zibrov, PR Hemmer, H Park, and MD Lukin. Generation of single optical plasmons in metallic nanowires coupled to quantum dots. *Nature*, 450(7168) :402, 2007.
- [85] Marie-Christine Dheur, Eloïse Devaux, Thomas W Ebbesen, Alexandre Baron, Jean-Claude Rodier, Jean-Paul Hugonin, Philippe Lalanne, Jean-Jacques Greffet, Gaétan Messin, and François Marquier. Single-plasmon interferences. *Science advances*, 2(3) :e1501574, 2016.
- [86] J Ajimo, M Marchante, A Krishnan, AA Bernussi, and L Grave de Peralta. Plasmonic implementation of a quantum eraser for imaging applications. *Journal of Applied Physics*, 108(6) :063110, 2010.
- [87] Aurélien Cuche, Oriane Mollet, Aurélien Drezet, and Serge Huant. “deterministic” quantum plasmonics. *Nano letters*, 10(11) :4566–4570, 2010.

- [88] Mark S Tame, KR McEnery, ŞK Özdemir, J Lee, SA Maier, and MS Kim. Quantum plasmonics. *Nature Physics*, 9(6) :329, 2013.
- [89] Roman Kolesov, Bernhard Grotz, Gopalakrishnan Balasubramanian, Rainer J Stöhr, Aurélien AL Nicolet, Philip R Hemmer, Fedor Jelezko, and Jörg Wrachtrup. Wave-particle duality of single surface plasmon polaritons. *Nature Physics*, 5(7) :470, 2009.
- [90] E Altewischer, MP Van Exter, and JP Woerdman. Plasmon-assisted transmission of entangled photons. *Nature*, 418(6895) :304, 2002.
- [91] Go Fujii, Toshiya Segawa, Shigehiko Mori, Naoto Namekata, Daiji Fukuda, and Shuichiro Inoue. Preservation of photon indistinguishability after transmission through surface-plasmon-polariton waveguide. *Optics letters*, 37(9) :1535–1537, 2012.
- [92] Giuliana Di Martino, Yannick Sonnefraud, Mark S Tame, Stéphane Kéna-Cohen, F Dieleman, ŞK Özdemir, MS Kim, and Stefan A Maier. Observation of quantum interference in the plasmonic hong-ou-mandel effect. *Physical Review Applied*, 1(3) :034004, 2014.
- [93] Hamidreza Siampour, Shailesh Kumar, and Sergey I Bozhevolnyi. Nanofabrication of plasmonic circuits containing single photon sources. *Acs Photonics*, 4(8) :1879–1884, 2017.
- [94] Xiaohui Ling, Xinxing Zhou, Kun Huang, Yachao Liu, Cheng-Wei Qiu, Hailu Luo, and Shuangchun Wen. Recent advances in the spin hall effect of light. *Reports on Progress in Physics*, 80(6) :066401, 2017.
- [95] Binbin Guan, Ryan P Scott, Chuan Qin, Nicolas K Fontaine, Tiehui Su, Carlo Ferrari, Mark Cappuzzo, Fred Klemens, Bob Keller, Mark Earnshaw, et al. Free-space coherent optical communication with orbital angular, momentum multiplexing/demultiplexing using a hybrid 3d photonic integrated circuit. *Optics express*, 22(1) :145–156, 2014.
- [96] Onur Hosten and Paul Kwiat. Observation of the spin hall effect of light via weak measurements. *Science*, 319(5864) :787–790, 2008.
- [97] Xiaobo Yin, Ziliang Ye, Junsuk Rho, Yuan Wang, and Xiang Zhang. Photonic spin hall effect at metasurfaces. *Science*, 339(6126) :1405–1407, 2013.
- [98] Yuri Gorodetski, Emmanuel Lombard, Aurélien Drezet, Cyriaque Genet, and Thomas W Ebbesen. A perfect plasmonic quarter-wave plate. *Applied Physics Letters*, 101(20) :201103, 2012.
- [99] Jan Petersen, Jürgen Volz, and Arno Rauschenbeutel. Chiral nanophotonic waveguide interface based on spin-orbit interaction of light. *Science*, page 1257671, 2014.
- [100] Konstantin Y Bliokh and Franco Nori. Transverse spin of a surface polariton. *Physical Review A*, 85(6) :061801, 2012.
- [101] Antoine Canaguier-Durand, James A Hutchison, Cyriaque Genet, and Thomas W Ebbesen. Mechanical separation of chiral dipoles by chiral light. *New Journal of Physics*, 15(12) :123037, 2013.

- [102] Andrea Aiello and Peter Banzer. The ubiquitous photonic wheel. *Journal of Optics*, 18(8) :085605, 2016.
- [103] Jin-Li Ren, Bo Wang, Meng-Meng Pan, Yun-Feng Xiao, Qihuang Gong, and Yan Li. Spin separations in the spin hall effect of light. *Physical Review A*, 92(1) :013839, 2015.
- [104] Patrick Rauter, Jiao Lin, Patrice Genevet, Suraj P Khanna, Mohammad Lachab, A Giles Davies, Edmund H Linfield, and Federico Capasso. Electrically pumped semiconductor laser with monolithic control of circular polarization. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 111(52) :E5623–E5632, 2014.
- [105] Quanbo Jiang, Julien Laverdant, Clementine Symonds, Aline Pham, Cecile Leluyer, Stephan Guy, Aurélien Drezet, and Joel Bellessa. Metasurface for reciprocal spin-orbit coupling of light on waveguiding structures. *Physical Review Applied*, 10(1) :014014, 2018.
- [106] Nanfang Yu, Francesco Aieta, Patrice Genevet, Mikhail A Kats, Zeno Gaburro, and Federico Capasso. A broadband, background-free quarter-wave plate based on plasmonic metasurfaces. *Nano letters*, 12(12) :6328–6333, 2012.
- [107] L Grave de Peralta, R Lopez-Boada, A Ruiz-Columbie, S Park, and AA Bernussi. Some consequences of experiments with a plasmonic quantum eraser for plasmon tomography. *Journal of Applied Physics*, 109(2) :023101, 2011.
- [108] Aline Pham, Quanbo Jiang, Airong Zhao, Joel Bellessa, Cyriaque Genet, and Aurélien Drezet. Manifestation of planar and bulk chirality mixture in plasmonic  $\lambda$ -shaped nanostructures caused by symmetry breaking defects. *ACS Photonics*, 4(10) :2453–2460, 2017.
- [109] Marlan O Scully and Kai Drühl. Quantum eraser : A proposed photon correlation experiment concerning observation and " delayed choice " in quantum mechanics. *Physical Review A*, 25(4) :2208, 1982.
- [110] Yuri Gorodetski, Nir Shitrit, Itay Bretner, Vladimir Kleiner, and Erez Hasman. Observation of optical spin symmetry breaking in nanoapertures. *Nano letters*, 9(8) :3016–3019, 2009.
- [111] Airong Zhao, Aline Pham, Nessim Jebali, and Aurélien Drezet. Spin-orbital angular momentum tomography of a chiral plasmonic lens using leakage radiation microscopy. *Optics letters*, 43(8) :1918–1921, 2018.
- [112] Zhongyi Guo, Zixiang Li, Jingran Zhang, Kai Guo, Fei Shen, Qingfeng Zhou, and Hongping Zhou. Review of the functions of archimedes' spiral metallic nanostructures. *Nanomaterials*, 7(11) :405, 2017.
- [113] Z Shen, ZJ Hu, GH Yuan, CJ Min, H Fang, and X-C Yuan. Visualizing orbital angular momentum of plasmonic vortices. *Optics letters*, 37(22) :4627–4629, 2012.
- [114] Wei-Yi Tsai, Jer-Shing Huang, and Chen-Bin Huang. Selective trapping or rotation of isotropic dielectric microparticles by optical near field in a plasmonic archimedes spiral. *Nano Letters*, 14(2) :547–552, 2014. PMID : 24392638.
- [115] Y. Gorodetski, A. Niv, V. Kleiner, and E. Hasman. Observation of the spin-based plasmonic effect in nanoscale structures. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :043903, Jul 2008.

- [116] Ching-Fu Chen, Chen-Ta Ku, Yi-Hsin Tai, Pei-Kuen Wei, Heh-Nan Lin, and Chen-Bin Huang. Creating optical near-field orbital angular momentum in a gold metasurface. *Nano letters*, 15(4) :2746–2750, 2015.
- [117] Jianlong Liu, Yang Gao, Lingling Ran, Kai Guo, Zhiwei Lu, and Shutian Liu. Focusing surface plasmon and constructing central symmetry of focal field with linearly polarized light. *Applied Physics Letters*, 106(1) :013116, 2015.
- [118] Gilad M Lerman, Avner Yanai, and Uriel Levy. Demonstration of nanofocusing by the use of plasmonic lens illuminated with radially polarized light. *Nano letters*, 9(5) :2139–2143, 2009.
- [119] Weixing Shu, Xiaohui Ling, Xiquan Fu, Yachao Liu, Yougang Ke, and Hailu Luo. Polarization evolution of vector beams generated by q-plates. *Photonics Research*, 5(2) :64–72, 2017.
- [120] Fuyong Yue, Dandan Wen, Jingtao Xin, Brian D. Gerardot, Jensen Li, and Xianzhong Chen. Vector vortex beam generation with a single plasmonic metasurface. *ACS Photonics*, 3(9) :1558–1563, 2016.
- [121] Yuqin Zhang, Ruirui Zhang, Xing Li, Li Ma, Chunxiang Liu, Changwei He, and Chuanfu Cheng. Radially polarized plasmonic vector vortex generated by a metasurface spiral in gold film. *Optics express*, 25(25) :32150–32160, 2017.
- [122] Martin Schäferling, Daniel Dregely, Mario Hentschel, and Harald Giessen. Tailoring enhanced optical chirality : Design principles for chiral plasmonic nanostructures. *Phys. Rev. X*, 2 :031010, Aug 2012.
- [123] Nina Meinzer, William L Barnes, and Ian R Hooper. Plasmonic meta-atoms and metasurfaces. *Nature Photonics*, 8(12) :889, 2014.
- [124] Georgiy Tkachenko and Etienne Brasselet. Optofluidic sorting of material chirality by chiral light. *Nature communications*, 5 :3577, 2014.
- [125] Yang Zhao, Amir N Askarpour, Liuyang Sun, Jinwei Shi, Xiaoqin Li, and Andrea Alu. Chirality detection of enantiomers using twisted optical metamaterials. *Nature communications*, 8 :14180, 2017.
- [126] Yiqiao Tang and Adam E. Cohen. Optical chirality and its interaction with matter. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :163901, Apr 2010.
- [127] Antoine Canaguier-Durand and Cyriaque Genet. Chiral near fields generated from plasmonic optical lattices. *Phys. Rev. A*, 90 :023842, Aug 2014.
- [128] Ryan Tullius, Geoffrey W. Platt, Larousse Khosravi Khorashad, Nikolaj Gadedgaard, Adrian J. Laphorn, Vincent M. Rotello, Graeme Cooke, Laurence D. Barron, Alexander O. Govorov, Affar S. Karimullah, and Malcolm Kadodwala. Superchiral plasmonic phase sensitivity for fingerprinting of protein interface structure. *ACS Nano*, 11(12) :12049–12056, 2017. PMID : 29220155.
- [129] Daniel M Lipkin. Existence of a new conservation law in electromagnetic theory. *Journal of Mathematical Physics*, 5(5) :696–700, 1964.
- [130] Yiqiao Tang and Adam E. Cohen. Enhanced enantioselectivity in excitation of chiral molecules by superchiral light. *Science*, 332(6027) :333–336, 2011.
- [131] Konstantin Y. Bliokh and Franco Nori. Characterizing optical chirality. *Phys. Rev. A*, 83 :021803, Feb 2011.

- [132] SeokJae Yoo and Q-Han Park. Chiral light-matter interaction in optical resonators. *Physical review letters*, 114(20) :203003, 2015.
- [133] Gérard Colas des Francs, Christian Girard, Jean-Claude Weeber, Cédric Chicane, Thierry David, Alain Dereux, and David Peyrade. Optical analogy to electronic quantum corrals. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :4950–4953, May 2001.
- [134] C. Chicanne, T. David, R. Quidant, J. C. Weeber, Y. Lacroute, E. Bourillot, A. Dereux, G. Colas des Francs, and C. Girard. Imaging the local density of states of optical corrals. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :097402, Feb 2002.
- [135] Rémi Carminati, Alexandre Cazé, Da Cao, F Peragut, V Krachmalnicoff, Romain Pierrat, and Yannick De Wilde. Electromagnetic density of states in complex plasmonic systems. *Surface Science Reports*, 70(1) :1–41, 2015.
- [136] R Sapienza, T Coenen, J Renger, M Kuttge, NF Van Hulst, and A Polman. Deep-subwavelength imaging of the modal dispersion of light. *Nature materials*, 11(9) :781, 2012.
- [137] Clara I Osorio, Abbas Mohtashami, and A Femius Koenderink. K-space polarimetry of bullseye plasmon antennas. *Scientific reports*, 5 :9966, 2015.
- [138] Yuri Gorodetski, Aurélien Drezet, Cyriaque Genet, and Thomas W. Ebbesen. Generating far-field orbital angular momenta from near-field optical chirality. *Phys. Rev. Lett.*, 110 :203906, May 2013.
- [139] M Schnell, P Sarriugarte, T Neuman, AB Khanikaev, G Shvets, J Aizpurua, and R Hillenbrand. Real-space mapping of the chiral near-field distributions in spiral antennas and planar metasurfaces. *Nano letters*, 16(1) :663–670, 2015.
- [140] Guanghao Rui, Don C Abeysinghe, Robert L Nelson, and Qiwen Zhan. Demonstration of beam steering via dipole-coupled plasmonic spiral antenna. *Scientific reports*, 3 :2237, 2013.
- [141] Xinlun Cai, Jianwei Wang, Michael J Strain, Benjamin Johnson-Morris, Jiangbo Zhu, Marc Sorel, Jeremy L O’Brien, Mark G Thompson, and Siyuan Yu. Integrated compact optical vortex beam emitters. *Science*, 338(6105) :363–366, 2012.
- [142] Da Cao, Alexandre Cazé, Michele Calabrese, Romain Pierrat, Nathalie Bardou, Stéphane Collin, Rémi Carminati, Valentina Krachmalnicoff, and Yannick De Wilde. Mapping the radiative and the apparent nonradiative local density of states in the near field of a metallic nanoantenna. *ACS Photonics*, 2(2) :189–193, 2015.
- [143] Lisa V. Poulikakos, Philipp Gutsche, Kevin M. McPeak, Sven Burger, Jens Niegemann, Christian Hafner, and David J. Norris. Optical chirality flux as a useful far-field probe of chiral near fields. *ACS Photonics*, 3(9) :1619–1625, 2016.
- [144] Shuai Zu, Yanjun Bao, and Zheyu Fang. Planar plasmonic chiral nanostructures. *Nanoscale*, 8(7) :3900–3905, 2016.
- [145] Shun Hashiyada, Tetsuya Narushima, and Hiromi Okamoto. Imaging chirality of optical fields near achiral metal nanostructures excited with linearly polarized light. *ACS Photonics*, 5(4) :1486–1492, 2018.

- [146] KH Drexhage. Influence of a dielectric interface on fluorescence decay time. *Journal of luminescence*, 1 :693–701, 1970.
- [147] L Aigouy, A Cazé, P Gredin, M Mortier, and R Carminati. Mapping and quantifying electric and magnetic dipole luminescence at the nanoscale. *Physical review letters*, 113(7) :076101, 2014.
- [148] Javad N Farahani, Dieter W Pohl, H-J Eisler, and B Hecht. Single quantum dot coupled to a scanning optical antenna : a tunable superemitter. *Physical review letters*, 95(1) :017402, 2005.
- [149] V. Krachmalnicoff, D. Cao, A. Cazé, E. Castanié, R. Pierrat, N. Bardou, S. Collin, R. Carminati, and Y. De Wilde. Towards a full characterization of a plasmonic nanostructure with a fluorescent near-field probe. *Opt. Express*, 21(9) :11536–11545, May 2013.
- [150] Alain Dereux, Christian Girard, and Jean-Claude Weeber. Theoretical principles of near-field optical microscopies and spectroscopies. *The Journal of Chemical Physics*, 112(18) :7775–7789, 2000.
- [151] Guillaume Baffou, Christian Girard, Erik Dujardin, Gérard Colas des Francs, and Olivier JF Martin. Molecular quenching and relaxation in a plasmonic tunable system. *Physical Review B*, 77(12) :121101, 2008.
- [152] Arthur Losquin, Sophie Camelio, David Rossouw, Mondher Besbes, Frédéric Pailloux, David Babonneau, Gianluigi A Botton, Jean-Jacques Greffet, Odile Stéphan, and Mathieu Kociak. Experimental evidence of nanometer-scale confinement of plasmonic eigenmodes responsible for hot spots in random metallic films. *Physical Review B*, 88(11) :115427, 2013.
- [153] M Kuttge, EJR Vesseur, AF Koenderink, HJ Lezec, HA Atwater, FJ García de Abajo, and A Polman. Local density of states, spectrum, and far-field interference of surface plasmon polaritons probed by cathodoluminescence. *Physical Review B*, 79(11) :113405, 2009.
- [154] Shuai Zu, Tianyang Han, Meiling Jiang, Feng Lin, Xing Zhu, and Zheyu Fang. Deep-subwavelength resolving and manipulating of hidden chirality in achiral nanostructures. *ACS nano*, 12(4) :3908–3916, 2018.
- [155] A Dereux, Ch Girard, C Chicanne, G Colas des Francs, T David, E Bourillot, Y Lacroute, and JC Weeber. Subwavelength mapping of surface photonic states. *Nanotechnology*, 14(8) :935, 2003.
- [156] Toon Coenen, Ernst Jan R Vesseur, Albert Polman, and A Femius Koenderink. Directional emission from plasmonic yagi-uda antennas probed by angle-resolved cathodoluminescence spectroscopy. *Nano letters*, 11(9) :3779–3784, 2011.
- [157] Martin Berthel, Quanbo Jiang, Aline Pham, Joel Bellessa, Cyriaque Genet, Serge Huant, and Aurélien Drezet. Directional local density of states of classical and quantum propagating surface plasmons. *Physical Review Applied*, 7(1) :014021, 2017.
- [158] Tianyang Han, Shuai Zu, Ziwei Li, Meiling Jiang, Xing Zhu, and Zheyu Fang. Reveal and control of chiral cathodoluminescence at subnanoscale. *Nano letters*, 2017.



- [159] Christian Girard, Olivier JF Martin, Gaëtan Lèveque, Gérard Colas des Francs, and Alain Dereux. Generalized bloch equations for optical interactions in confined geometries. *Chemical physics letters*, 404(1-3) :44–48, 2005.
- [160] Aurélien Cuche, Oriane Mollet, Aurélien Drezet, and Serge Huant. “deterministic” quantum plasmonics. *Nano letters*, 10(11) :4566–4570, 2010.
- [161] A Hohenau, JR Krenn, Aurélien Drezet, O Mollet, S Huant, C Genet, B Stein, and TW Ebbesen. Surface plasmon leakage radiation microscopy at the diffraction limit. *Optics express*, 19(25) :25749–25762, 2011.
- [162] Tao Wang, Elizabeth Boer-Duchemin, Geneviève Comtet, E Le Moal, Gérald Dujardin, Aurélien Drezet, and Serge Huant. Plasmon scattering from holes : from single hole scattering to young’s experiment. *Nanotechnology*, 25(12) :125202, 2014.
- [163] Ward Brullot, Maarten K. Vanbel, Tom Swusten, and Thierry Verbiest. Resolving enantiomers using the optical angular momentum of twisted light. *Science Advances*, 2(3), 2016.
- [164] Aurélien Cuche, Aurélien Drezet, Yannick Sonnefraud, Orestis Faklaris, François Treussart, Jean-François Roch, and Serge Huant. Near-field optical microscopy with a nanodiamond-based single-photon tip. *Optics express*, 17(22) :19969–19980, 2009.
- [165] Ryan Beams, Dallas Smith, Timothy W. Johnson, Sang-Hyun Oh, Lukas Novotny, and A. Nick Vamivakas. Nanoscale fluorescence lifetime imaging of an optical antenna with a single diamond nv center. *Nano Letters*, 13(8) :3807–3811, 2013. PMID : 23815462.
- [166] Ze’ev Bomzon, Gabriel Biener, Vladimir Kleiner, and Erez Hasman. Radially and azimuthally polarized beams generated by space-variant dielectric subwavelength gratings. *Opt. Lett.*, 27(5) :285–287, Mar 2002.
- [167] Giovanni Milione, Thien An Nguyen, Jonathan Leach, Daniel A. Nolan, and Robert R. Alfano. Using the nonseparability of vector beams to encode information for optical communication. *Opt. Lett.*, 40(21) :4887–4890, Nov 2015.
- [168] Ching-Han Yang, Yuan-Di Chen, Shing-Troing Wu, and Andy Ying-Guey Fuh. Independent manipulation of topological charges and polarization patterns of optical vortices. *Scientific reports*, 6 :31546, 2016.
- [169] Young Chul Jun, Kevin CY Huang, and Mark L Brongersma. Plasmonic beaming and active control over fluorescent emission. *Nature communications*, 2 :283, 2011.
- [170] Heykel Aouani, Oussama Mahboub, Eloïse Devaux, Hervé Rigneault, Thomas W. Ebbesen, and Jérôme Wenger. Plasmonic antennas for directional sorting of fluorescence emission. *Nano Letters*, 11(6) :2400–2406, 2011. PMID : 21591739.
- [171] Jordan A Hachtel, Roderick B Davidson, Elena R Kovalik, Scott T Retterer, Andrew R Lupini, Richard F Haglund, Benjamin J Lawrie, and Sokrates T Pantelides. Polarization-and wavelength-resolved near-field imaging of complex plasmonic modes in archimedean nanospirals. *Optics letters*, 43(4) :927–930, 2018.

- [172] Keith D. Bonin, Bakhit Kourmanov, and Thad G. Walker. Light torque nanocontrol, nanomotors and nanorockers. *Opt. Express*, 10(19) :984–989, Sep 2002.
- [173] Péter Galajda and Pál Ormos. Orientation of flat particles in optical tweezers by linearly polarized light. *Opt. Express*, 11(5) :446–451, Mar 2003.
- [174] ER Méndez, J-J Greffet, and R Carminati. On the equivalence between the illumination and collection modes of the scanning near-field optical microscope. *Optics communications*, 142(1-3) :7–13, 1997.
- [175] Emmanuel Lombard. *Etude des caractéristiques d'un faisceau contrôlé en polarisation après transmission à travers différentes nanostructures*. PhD thesis, Université de Strasbourg, 2012.
- [176] Muhammad Z Alam, J Stewart Aitchison, and Mo Mojahedi. A marriage of convenience : Hybridization of surface plasmon and dielectric waveguide modes. *Laser & Photonics Reviews*, 8(3) :394–408, 2014.
- [177] G Spektor, D Kilbane, AK Mahro, B Frank, S Ristok, L Gal, P Kahl, D Podbiel, S Mathias, H Giessen, et al. Revealing the subfemtosecond dynamics of orbital angular momentum in nanoplasmonic vortices. *Science*, 355(6330) :1187–1191, 2017.
- [178] Yuri Gorodetski, Thibault Chervy, Shaojun Wang, James A Hutchison, Aurélien Drezet, Cyriaque Genet, and Thomas W Ebbesen. Tracking surface plasmon pulses using ultrafast leakage imaging. *Optica*, 3(1) :48–53, 2016.
- [179] Immo Söllner, Sahand Mahmoodian, Sofie Lindskov Hansen, Leonardo Midolo, Alisa Javadi, Gabija Kiršanskė, Tommaso Pregnolato, Haitham El-Ella, Eun Hye Lee, Jin Dong Song, et al. Deterministic photon–emitter coupling in chiral photonic circuits. *Nature nanotechnology*, 10(9) :nnano–2015, 2015.



## Caractérisation de la chiralité optique dans des systèmes plasmoniques

**Résumé** L'objectif de ce projet de thèse est de mettre en évidence des phénomènes de chiralité optique induits dans des systèmes plasmoniques. La manipulation des différents degrés de liberté de la lumière est mise en évidence par le biais de techniques expérimentales complémentaires basées sur la tomographie en polarisation, la microscopie à fuites radiatives et la microscopie en champ proche optique (SNOM). D'une part, nous rapportons une méthode de caractérisation non-invasive afin de révéler la présence conjointe de chiralité planaire et volumique au sein de métasurfaces plasmoniques. Pour décrire cette chiralité mixte, une généralisation du modèle de Kuhn est développée. D'autre part, nous démontrons deux dispositifs plasmoniques exploitant le couplage spin-orbite optique pour contrôler les moments angulaires de spin et orbitaux de la lumière. En particulier, le mécanisme réciproque de l'effet spin Hall optique est démontré à l'aide de nano-ouvertures en forme de  $T$  : la trajectoire des plasmons de surface est adressée dans le moment angulaire de spin des photons. Cette fonctionnalité est ensuite mise en œuvre dans une expérience de brouillage d'interférence. La génération de vortex plasmoniques est également réalisée par le biais de cavités spirales, dont la chiralité conditionne l'intensité et le moment angulaire orbital des vortex. Enfin, une preuve de concept sur la mesure de la densité locale d'états optique, façonnée par un environnement chiral, est démontrée à l'aide d'une sonde SNOM classique et quantique. Ce travail permet de connecter les grandeurs de densité et de flux de chiralité aux interactions lumière-matière. L'étude de la chiralité dans le contexte de la plasmonique ouvre des perspectives prometteuses dans la nano-manipulation optique, la séparation de molécules chirales et le contrôle de sources quantiques.

## Characterization of chiral optical effects in plasmonic systems

**Abstract** In this thesis, we aim at demonstrating chiral optical effects in plasmonic systems. The manipulation of the different degrees of freedom of light is evidenced by complementary experimental approaches based on polarisation tomography, leakage radiation microscopy and scanning near-field optical microscopy (SNOM). On one hand, we report on a non-invasive method to reveal the coexistence of surface and bulk chirality in plasmonic metasurfaces. Specifically, we extend the model of Kuhn to describe this chirality mixture. On the other hand, we demonstrate two plasmonic devices which rely on the optical spin-orbit coupling to control the spin and the orbital angular momentum of light. In particular, the reciprocal mechanism of the spin Hall effect of light is shown using  $T$ -shaped nano-apertures : the trajectory of surface plasmons can be encoded in the spin of the photons. This which-path marker is then implemented in an interference eraser experiment. Plasmonic vortex generation is also reported in spiral cavities. The spiral chirality rules the intensity as well as the angular orbital momentum of the singular fields. Finally, as a proof of concept, we demonstrate using a conventional and quantum SNOM probe that the local density of optical states can be structured by a chiral environment. We also connect the density and flux chirality to light-matter interactions. Studying chirality in the context of plasmonics opens promising prospects in the optical nano-manipulation, chiral molecules discrimination and the control of quantum sources.