



HAL
open science

Contrôle de l'émission et de la propagation de lumière par des nanostructures diélectriques à fort indice de réfraction

Martin Montagnac

► **To cite this version:**

Martin Montagnac. Contrôle de l'émission et de la propagation de lumière par des nanostructures diélectriques à fort indice de réfraction. Physique [physics]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2023. Français. NNT : 2023TOU30224 . tel-04551310

HAL Id: tel-04551310

<https://theses.hal.science/tel-04551310>

Submitted on 18 Apr 2024

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

**En vue de l'obtention du
DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE
Délivré par l'Université Toulouse 3 - Paul Sabatier**

**Présentée et soutenue par
Martin MONTAGNAC**

Le 29 septembre 2023

**Contrôle de l'émission et de la propagation de lumière par des
nanostructures diélectriques à fort indice de réfraction**

Ecole doctorale : **SDM - SCIENCES DE LA MATIERE - Toulouse**

Spécialité : **Physique de la Matière**

Unité de recherche :

CEMES - Centre d'Élaboration de Matériaux et d'Études Structurales

Thèse dirigée par

Vincent PAILLARD et Gonzague AGEZ

Jury

Dr. Stéphanie BUIL,

Rapporteuse, Maître de Conférences, GEMAC, Université Versailles St Quentin en Yvelines

Dr. Nicolas BONOD,

Rapporteur, Directeur de Recherches au CNRS, Institut Fresnel, Aix-Marseille Université

Dr. Olivier GAUTHIER-LAFAYE,

Examineur, Directeur de Recherches au CNRS, LAAS-CNRS, Université de Toulouse

Dr. Étienne BRASSELET,

Examineur, Directeur de Recherches au CNRS, LOMA, Université de Bordeaux

Pr. Vincent PAILLARD,

Directeur de thèse, Professeur des Universités, CEMES-CNRS, Université de Toulouse

Dr. Gonzague AGEZ,

Directeur de thèse, Maître de Conférences, CEMES-CNRS, Université de Toulouse

SOMMAIRE

Introduction générale	6
1 État de l’art et objectifs	8
1.1 Introduction à la Mie-tronique	9
1.1.1 Qu’est-ce que la Mie-tronique?	10
1.1.2 Mie-tronique versus plasmonique	12
1.1.3 Nano-antennes de silicium	14
1.2 Objectif : contrôle de la photoluminescence d’émetteurs quan- tiques	17
1.2.1 Couplage antenne émetteur	17
1.2.2 Les émetteurs : oxydes dopés à l’euporium Eu^{3+}	17
1.2.3 Faisceaux de polarisations azimutale et radiale	20
2 Propriétés optiques de nano-sphéroïdes de silicium éclairées par des faisceaux vectoriels cylindriques	23
2.1 Résonances de Mie	24
2.2 Faisceaux vectoriels cylindriques et simulation numérique	27
2.2.1 Formulation analytique de faisceaux vectoriels cylin- driques	27
2.2.2 Utilisation de la bibliothèque Meep et formulation de faisceaux vectoriels cylindriques	29
2.3 Résultats numériques : cas de sphéroïdes de silicium	31
2.3.1 Cas de la boule de silicium : contrôle des résonances de Mie	31
2.3.2 Anisotropie de forme et ingénierie de la longueur d’onde de résonance du mode	36

3 Aspects techniques : échantillons, banc expérimental et traitement des données	45
3.1 Les échantillons	45
3.2 Description du dispositif expérimental	48
3.3 Génération et injection des faisceaux vectoriels cylindriques . .	50
3.3.1 Génération d'un faisceau vectoriel cylindrique	50
3.3.2 Coefficients de Stokes pour analyser un faisceau vectoriel cylindrique	51
3.4 Mesures spectroscopiques	56
3.5 Mesure de durée de vie	59
3.6 Cartographie et traitement des données	62
4 Contrôle de la photoluminescence d'émetteurs placés dans le champ proche de nano-anneaux de silicium	67
4.1 Le spectre Raman du silicium comme révélateur des antennes	67
4.1.1 Cartographie de la diffusion Raman à deux phonons optiques du silicium	68
4.1.2 Interprétation des effets d'excitation	69
4.2 Résultats : cartographies de photoluminescence et façonnage du champ proche optique	71
4.2.1 Résultats expérimentaux : photoluminescence	71
4.2.2 Interprétation : simulations du champ proche optique par méthode <i>FDTD</i>	73
4.3 Les taux d'émission radiative pour sonder les effets d'émission	75
4.3.1 Résultats	75
4.3.2 Définition du modèle d'interprétation	78
4.3.3 Résultats numériques et comparaison	82
5 Conclusion et perspectives	85
Résumé	87
A Diagramme de diffusion	88
B Régime de saturation de l'euporium	90

Introduction générale

Les antennes optiques sont un concept moderne de la physique. Elles permettent de contrôler les ondes optiques à des échelles sub-longueur d'onde. Le principe est identique aux antennes radio-fréquence : elles confinent et guident l'onde incidente vers un récepteur lorsqu'on parle de détection ou alors elles exaltent et redirigent la lumière d'un émetteur.

La recherche en nanophotonique a profité des progrès récents en nanofabrication, et propose de construire les briques de base pour manipuler la lumière à l'échelle de la centaine de nanomètres. Les travaux présentés dans ce manuscrit de thèse s'inscrivent dans ce contexte.

Pour parvenir à manipuler la lumière à cette échelle, nous couplons de l'euporium Eu^{3+} à des nano-antennes de silicium. Ces systèmes sont ensuite excités par des faisceaux cylindriques de polarisation azimutale ou radiale.

Dans un premier chapitre, nous plaçons le sujet au sein de la recherche actuelle et nous exprimons nos objectifs en détaillant les effets physiques entrant en jeu ; à savoir la diffusion de Mie, les propriétés de photoluminescence de l'euporium et les singularités des faisceaux cylindriques de polarisations azimutale et radiale.

Le deuxième chapitre est dédié aux simulations numériques de la diffusion de Mie de structures anisotropes en réponse à des excitations de différentes polarisations. Nous y montrons les capacités de contrôle sur les modes de Mie, sur l'exaltation locale du champ proche optique ainsi que sur la radiation en champ lointain et *de facto* l'effet que ces systèmes auront sur des émetteurs placés dans le champ proche de ces structures.

Le troisième chapitre a une coloration technique, nous y détaillons le processus de fabrication des échantillons et le montage expérimental. Une attention particulière est donnée à l'injection de faisceaux cylindriques de polarisation et à leur caractérisation. Les traitements de données numériques sont détaillés dans ce même chapitre.

Le quatrième chapitre est consacré aux résultats expérimentaux et aux simulations numériques permettant de les modéliser. Nous nous intéressons aux effets de champ proche optique et de densité locale d'états photoniques, ainsi que leurs influences sur la photoluminescence des émetteurs.

Enfin, le cinquième chapitre permet de conclure sur les travaux effectués. Nous y proposons également des perspectives pour le futur de ce projet.

Chapitre 1

État de l’art et objectifs

Un des enjeux technologiques actuel est la miniaturisation des objets. L’électronique offre un parfait exemple des avancées faites en terme de miniaturisation, notamment pour une plus grande densité de composants comme le montre les lois de Moore [Moo95] et pour des économies d’énergies.

Dans le domaine de l’optique, depuis plus de vingt ans maintenant, les scientifiques se sont lancés le défi de manipuler la lumière à des échelles toujours plus petites jusqu’à atteindre des dimensions sub-longueurs d’onde. Les concepts physiques régissant les interactions rayonnement-matière ont dû être revisités afin de rendre compte des nouveaux rapports d’échelles entre la longueur d’onde et la taille des objets.

La plasmonique, l’étude des propriétés optiques de nano-objets métalliques, est un domaine précurseur en la matière [PAB08 ; Sch+10] et de nombreuses applications ont émergé. On peut par exemple citer l’utilisation de nanoparticules pour traquer des cellules dans le domaine de la biologie [Ank+08] ou encore l’utilisation de nano-structures métalliques comme guides d’ondes pour transporter de l’information [Mer+16].

Le terme nano-optique ou nano-photonique apparaît dans les années quatre-vingt-dix [San20 ; Won19] pour définir ce domaine de recherche.

Quelques années après, des études sur des solutions colloïdales de microsphères de silicium [FMT08] ou de nano-fils de germanium [Cao+10b] ont montré que l’utilisation de matériaux diélectriques offre de nouvelles possibilités pour relever ces défis avec par exemple des applications dans le domaine photovoltaïque [Cao+10a ; BCF14], pour les métamatériaux et les metasurfaces [Kuz+16 ; SS17] ou encore pour le contrôle de la lumière à l’échelle nanométrique [Shc+14 ; Rol+12].

Toutes ces applications trouvent leur origine dans le fait que les structures diélectriques peuvent accueillir dans leur volume de fortes résonances de Mie. Ces modes peuvent être de nature électrique ou magnétique permettant, via de l'ingénierie en champ proche, de manipuler l'onde lumineuse. Des exemples comme les métasurfaces de Huygens [Dec+15] ou l'effet Kerker [Sha+19] ont contribué à l'émergence d'un nouveau domaine de recherche appelé la Mie-tronique [Won19; Bar+17a].

Cette thèse s'inscrit dans ce domaine avec pour objectif le contrôle d'une source de lumière quasi-ponctuelle placée dans l'environnement proche d'une nano-structure diélectrique à fort indice de réfraction.

Ce chapitre est scindé en deux parties. Dans la première partie, nous introduisons la Mie-tronique, nous effectuons une comparaison avec la plasmonique, enfin, nous justifions le choix du silicium cristallin comme matériau pour nos besoins. Dans la deuxième partie nous présentons les différents éléments du système étudié (les antennes, les émetteurs, les faisceaux excitateurs), ainsi que les objectifs fixés.

1.1 Introduction à la Mie-tronique

Dans son article de 1908, Gustav Mie formule analytiquement les champs électrique et magnétique diffusés à l'intérieur et à l'extérieur d'une nanoboule excitée par une onde plane monochromatique à partir des équations de Maxwell [Mie08].

Ces deux champs diffusés \mathbf{E}_D et \mathbf{H}_D sont des combinaisons linéaires de deux champs vectoriels \mathbf{M} et \mathbf{N} :

$$\mathbf{E}_D = \sum_{n=1}^{\infty} E_n (i a_n \mathbf{N} - b_n \mathbf{M}) \quad (1.1)$$

$$\mathbf{H}_D = \frac{k}{\omega \mu} \sum_{n=1}^{\infty} E_n (i b_n \mathbf{N} + a_n \mathbf{M}) \quad (1.2)$$

Où $E_n = i^n E_0 (2n + 1) / (n(n + 1))$, μ est la perméabilité de la boule, a_n et b_n sont des coefficients de diffusion, k est le nombre d'onde et ω est la pulsation.

Et \mathbf{M} et \mathbf{N} sont définis comme :

$$\mathbf{M} = \nabla \wedge (\mathbf{c}\psi) \quad (1.3)$$

$$\mathbf{N} = \frac{\nabla \wedge \mathbf{M}}{k} \quad (1.4)$$

Où \mathbf{c} est une constante arbitraire et ψ est la solution de l'équation d'onde. Pour plus de détails, le lecteur peut se référer au livre de C. F. BOHREN et D. R. HUFFMAN [Boh83].

1.1.1 Qu'est-ce que la Mie-tronique ?

Si on devait se risquer à définir la Mie-tronique en une phrase, cela pourrait être la suivante : La Mie-tronique est le domaine d'étude qui s'intéresse au contrôle de la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde en exploitant les résonances de Mie, autrement dit la réponse optique de nano-structures diélectriques à une excitation.

Lorsqu'on parle de contrôle de la lumière, il s'agit de maîtriser la distribution de la densité d'énergie électrique ou magnétique en champ proche, l'intensité et la directivité en champ lointain, les états de polarisation en champs proche et lointain ainsi que les rapports de phase entre les champs électrique et magnétique.

Pour y parvenir, il est possible de jouer sur des paramètres que sont le type de matériau qui compose la nano-structure [Bar+17b ; Gar+11], sa taille [Cao+10b ; Evt+10 ; Fu+13], sa forme [Wie+17b ; Ree+16], le couplage entre plusieurs nano-structures [Evt+10 ; Sta+13 ; Yan+15 ; Bar+19 ; Liu+20] mais également la nature de l'excitatrice, sa polarisation et sa longueur d'onde [Man+20 ; Mon+22].

Les nano-structures diélectriques, en particulier, offrent beaucoup de degrés de liberté, puisque ces dernières permettent d'accéder à des résonances de Mie électrique et magnétique [Sta+13 ; Kuz+16 ; Liu+20]. La figure 1.1 montre des schémas des champs électrique et magnétique dans une boule diélectrique à résonances dipolaire électrique et magnétique, inspirés de la revue de A. KUZNETSOV *et al.* [Kuz+16].

À la résonance dipolaire électrique (à gauche sur la figure 1.1), le champ électrique oscille dans une direction privilégiée. Dans le cas de la résonance dipolaire magnétique (à droite sur la figure 1.1), c'est le champ magnétique

qui oscille dans une direction privilégiée. Plus de détails sont donnés dans le chapitre 2.

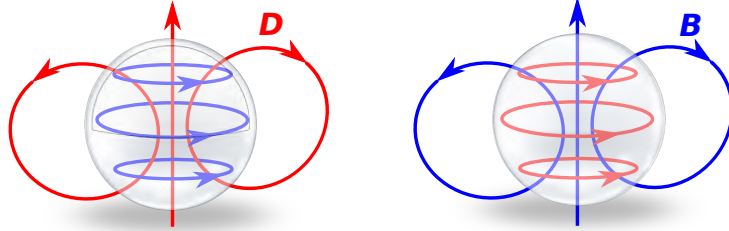


FIGURE 1.1 – Schémas des champs électrique et magnétique dans le cas d’une résonance dipolaire électrique (à gauche) et dipolaire magnétique (à droite) dans une boule diélectrique.

L’accès à ces différentes résonances est un grand avantage dans la quête de contrôle de la lumière puisque cela permet, en champ proche, de manipuler séparément les aspects électrique et magnétique de la lumière. Et en contrôlant l’orientation respectives des modes de Mie électrique et magnétique, ainsi que le déphasage entre ceux-ci, il est possible d’orienter la diffusion en champ lointain dans une direction. Cet effet est appelé l’effet Kerker généralisé [LK18].

Par analogie avec les antennes hertziennes dans le domaine des ondes radio-fréquences, on parle ici de nano-antennes.

Avec pour idée de toujours réduire la taille des structures pour un gain de place mais également pour obtenir un confinement plus efficace de la lumière (donc des densités d’énergies plus importantes), les matériaux à fort indice de réfraction sont préférés.

En effet, la première résonance de Mie¹, c’est à dire celle de grande longueur d’onde, est atteinte dans une nanostructure sphérique si la condition suivante est respectée : $\lambda_{DM} = n \cdot D$ [Evl+12]. Plus l’indice de réfraction n est élevé, plus le diamètre D devra être petit pour obtenir la résonance dipolaire magnétique à la longueur d’onde λ_{DM} .

La figure 1.2 montre les densités d’énergies ainsi que les champs de vecteurs électrique et magnétique dans deux boules, une de diamètre 330 nm et d’indice optique $n = 2$ et l’autre de diamètre 165 nm et d’indice optique $n =$

1. Pour un diélectrique, la première résonance est la résonance dipolaire magnétique [Kuz+12].

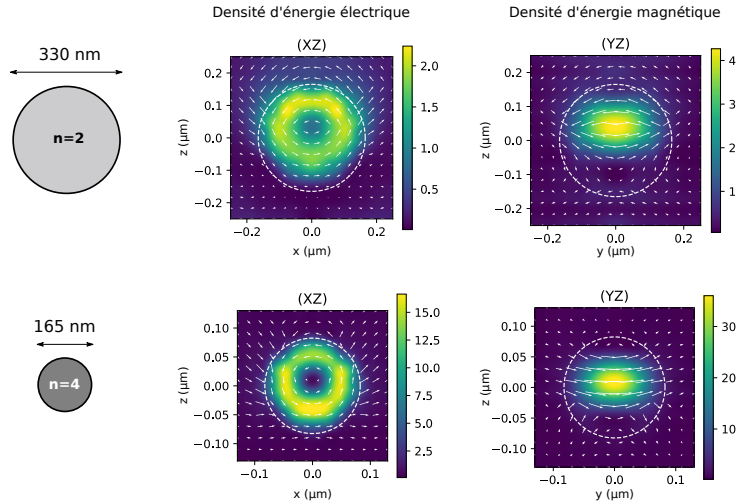


FIGURE 1.2 – Simulations numériques des densités d'énergie ainsi que des champs de vecteurs électrique et magnétique dans deux boules de diamètres et d'indices optiques différents éclairées par une polarisation linéaire à 658 nm.

4. Les indices optiques ont été calculés pour conserver la résonance dipolaire magnétique λ_{DM} à 658 nm.

À la longueur d'onde λ_{DM} constante et en multipliant l'indice d'un facteur 2, la première résonance (DM) se développe alors dans une boule de diamètre deux fois plus petit. La densité d'énergie étant relative au volume du mode, elle est multipliée par un facteur 8.

De plus, nous observons l'effet de contraste d'indice qui confine l'énergie à l'intérieur de la structure dans le cas des forts indices de réfraction alors qu'une partie de l'énergie est hors de la structure dans le cas $n = 2$.

Utiliser des matériaux à fort indice de réfraction permet donc de réduire les dimensions du système, d'augmenter le facteur de qualité des résonances de Mie et de confiner l'énergie électrique dans la structure.

1.1.2 Mie-tronique versus plasmonique

Bien que la plasmonique et la Mie-tronique partagent le même principe physique, l'utilisation de métaux plutôt que de diélectriques à fort indice de réfraction comme antenne offre des différences notables.

Une différence entre les métaux et les diélectriques est la localisation

des exaltations locales de champs (voir figure 1.3a-d) : les densités d'énergie électrique ou magnétique sont forcément localisées en surface pour les métaux tandis qu'elles sont confinées dans la structure pour les diélectriques. Ce qui est très intéressant dès lors qu'on positionne des émetteurs autour de la structure. Dans le cas de la boule d'or, les exaltations sont faibles (fig. 1.3c,d). Afin d'augmenter l'exaltation locale de champ dans le cas des métaux, il est possible d'arranger des structures en dimère par exemple [Mus+07] pour obtenir une exaltation très forte entre les structures.

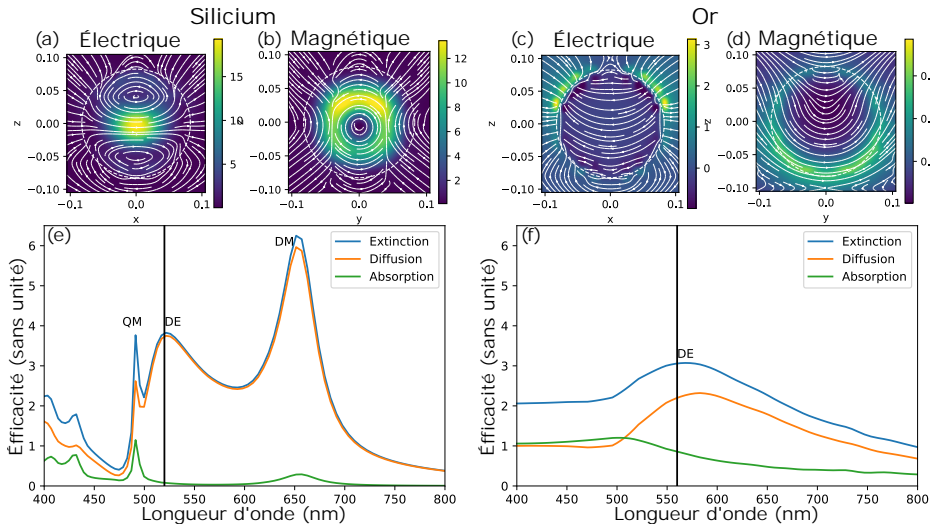


FIGURE 1.3 – Comparaison des propriétés optiques de boules de silicium et d'or de diamètre 165 nm, éclairées par une onde plane (simulations numériques FDTD). (a-d) distribution des champs proches électrique et magnétique pour la résonance DE. (e-f) Spectres d'extinction, de diffusion et d'absorption en champ lointain.

Cependant, les métaux n'offrent que des résonances électriques, seules des exaltations de champ proche électrique sont induits dans les structures simples².

Le spectre de diffusion de la boule d'or (figure 1.3f) montre une résonance associée à un mode dipolaire électrique. Le facteur de qualité, défini comme le rapport de $f_0/\Delta f$ (avec f_0 la position spectrale du pic de résonance et Δf la

2. Il est possible d'obtenir des résonances plasmoniques magnétique mais cela nécessite des formes spécifiques comme des anneaux pour générer une boucle de courant par exemple [Ji+21].

largeur à mi-hauteur de cette résonance) reste relativement faible ($Q \approx 2, 5$) et l'absorption est significative sur l'ensemble de la gamme visible. La signature du mode dipolaire électrique est visible en champ proche : l'exaltation du champ est maximale à l'extérieur de la structure. Pour cette raison, les résonances plasmons sont très sensibles à leur environnement diélectrique.

Dans le cas du silicium, le milieu étant diélectrique, il peut accueillir des courants de déplacement dans le volume. La distribution de la densité d'énergie dans le cas de la résonance dipolaire électrique est donnée dans la figure 1.3a-b. Nous avons cette fois, pour la résonance DE, un facteur de qualité $Q \approx 10$. De plus, le spectre de diffusion montre plusieurs pics de résonances en plus du mode dipolaire électrique, comme le mode dipolaire magnétique DM qui a un facteur de qualité $Q \approx 7$ (ce dernier permet d'avoir aussi de très fortes exaltations). Et le mode QM avec un facteur qualité $Q \approx 4$. Ces différents pics correspondent à des modes de Mie qualifiés d'électriques ou magnétiques en fonction de la circulation des courants de déplacement associés. Enfin, la partie imaginaire de l'indice de réfraction du silicium étant très petite pour les longueurs d'onde supérieures à 450 nm, l'absorption reste très faible par rapport à l'efficacité de diffusion dans cette gamme de longueur d'onde.

1.1.3 Nano-antennes de silicium

Parmi les diélectriques à fort indice de réfraction dans le domaine du visible et avec un faible coefficient d'extinction, nous pouvons citer les matériaux semiconducteurs suivant : l'arséniure de gallium (GaAs), le phosphore de gallium (GaP), le phosphore d'indium (InP), le dioxyde de titane (TiO_2), le germanium (Ge), le silicium (Si) (voir table 1.1).

Parmi ces matériaux, le silicium cristallin présente l'avantage d'avoir très peu de pertes dans cette gamme de longueur d'onde.

En effet, la figure 1.4 montre que le coefficient d'extinction du silicium cristallin est très faible dans le visible du fait de sa transition de bande interdite directe dans l'ultraviolet et indirecte dans l'infrarouge (voir table 1.1). On observe par ailleurs sur cette figure que l'indice de réfraction du silicium est très élevé dans cette même gamme, autour de 4.

Comme nous pouvons remarquer sur la table 1.1 le phosphore de gallium (GaP) aurait également été un bon candidat. Son indice de réfraction est aussi très élevé dans le domaine visible et son coefficient d'extinction est presque nul. Cependant, l'équipement et le savoir-faire du CEMES et des laboratoires

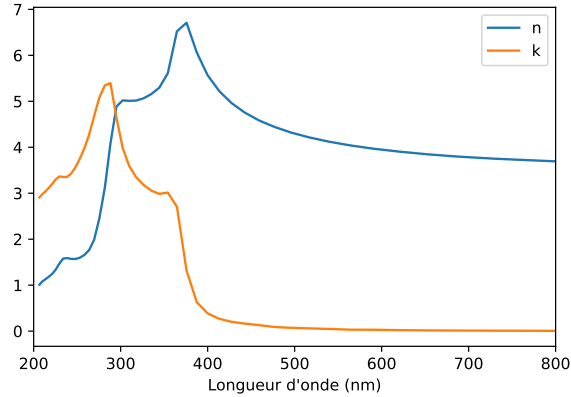


FIGURE 1.4 – Indice de réfraction n et coefficient d’extinction k du silicium cristallin en fonction de la longueur d’onde [AS83].

Matériaux	Gamme spectrale, μm	Indice de réfraction, n	Coefficient d’extinction, k	Nature de la bande interdite	Références
<i>Si</i>	0,50-1,45	4,263-3,486	0,045-0,001	indirecte	[GK95]
<i>Ge</i>	0,50-0,60	4,460-5,811	2,366-1,389	indirecte	[Jel92]
	0,60-0,80	5,811-4,699	1,389-0,3		
<i>GaAs</i>	0.50-0.80	4,037-3,679	0,376-0,089	directe	[Jel92]
<i>GaP</i>	0,50-0,80	3,590-3,197	≈ 0	indirecte	[Jel92]
<i>InP</i>	0,50-0,80	3,456-3,818	0,203-0,511	directe	[AS83]
		2,715-2,483	≈ 0	indirecte	[DeV51]

TABLE 1.1 – Propriétés optiques de certains matériaux diélectriques à fort indice de réfraction. Cette table à été tirée de la compilation faites dans la revue de D. G. BARANOV *et al.* [Bar+17a].

partenaires sont adaptés à la fabrication de structures de silicium, le choix entre ces deux matériaux était donc évident.

Pour s'approcher le plus possible de nanostructures de silicium cristallin dans l'air, on utilise des substrats de type :

- *SOQ* : Silicium sur Quartz (figure 1.5a).
- *SOI* : Silicium sur Isolant (figure 1.5b).

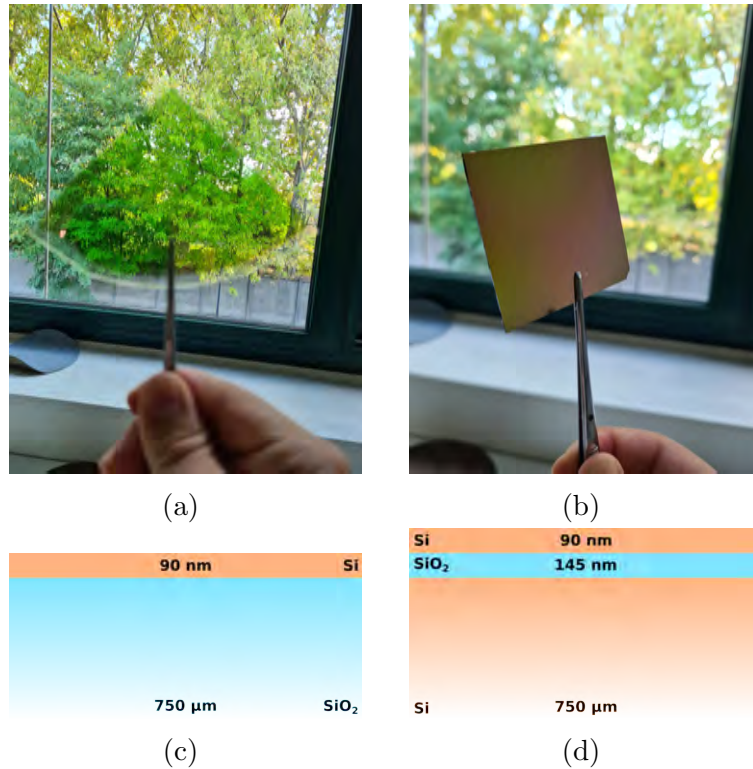


FIGURE 1.5 – (a) : morceau d'un *wafer SOQ*. Ce dernier apparaît transparent malgré la couche de silicium cristallin de 90 nm d'épaisseur. (b) : morceau d'un *wafer SOI*. (c) : coupe schématique d'un *wafer SOQ*. (d) : coupe schématique d'un *wafer SOI*.

Les résultats expérimentaux présentés dans cette thèse sont réalisés à partir de structures *SOQ* (voir figure 1.5). Le substrat sur lequel sont les nano-structures de silicium est alors du dioxyde de silicium (SiO₂) qui a une très faible absorption dans le visible et ne gêne en rien les mesures optiques

tout en conservant un contraste d'indice important pour le confinement de l'énergie électromagnétique dans les structures.

1.2 Objectif : contrôle de la photoluminescence d'émetteurs quantiques

Les objectifs fixés pour cette thèse sont de pouvoir générer des nano-sources de lumière et de contrôler l'émission de lumière à l'échelle sub-longueur d'onde. Pour ce faire, nous plaçons des émetteurs quantiques (des cations europium Eu^{3+}) autour de nano-antennes de silicium que nous excitons avec des faisceaux singuliers : des faisceaux vectoriels cylindriques de polarisations azimutale et radiale.

1.2.1 Couplage antenne émetteur

Il a été montré que l'intensité de la photoluminescence d'un émetteur placé à proximité d'une antenne peut se décomposer en trois termes [Koe17] :

$$I(\mathbf{r}, \omega_{pompe}, \omega_{ém.}) \propto P_{pompe}(\mathbf{r}, \omega_{pompe}) \cdot \phi(\mathbf{r}, \omega_{ém.}) \cdot C_{AN}(\mathbf{r}, \omega_{ém.}) \quad (1.5)$$

Où :

- \mathbf{r} est la position de l'émetteur.
- ω_{pompe} est la pulsation de la pompe.
- P_{pompe} correspond à l'exaltation de l'émission de la photoluminescence de l'émetteur due à l'excitation de la pompe elle-même et/ou a des effets de champ proche (exaltation ou déplétion locale de champ).
- ϕ correspond à l'efficacité quantique liée à la densité locale d'états photoniques ($LDOS^3$).
- C_{AN} est l'efficacité de collection qui dépend de l'angle solide d'émission et de l'angle solide de détection.

1.2.2 Les émetteurs : oxydes dopés à l'europium Eu^{3+}

Les terres rares sont composées de 17 éléments, dont 15 sont des lanthanides, groupe 3 dans le tableau périodique. Ils ont donc trois électrons de

3. Acronyme anglais pour « Local Density of photon States ».

valence, aussi, il est commun de les trouver sous forme de cations. Leur singularité est d'avoir la luminescence qui réside dans les transitions électroniques 4f.

Dans les travaux présentés ici, l'émetteur utilisé est le cation europium Eu^{3+} , un lanthanide qui présente plusieurs avantages pour nos objectifs.

Sa configuration électronique $[\text{Xe}]4f^6$ admet l'état 7F_0 comme état fondamental et l'état 5D_0 comme premier état excité (voir figure 1.6).

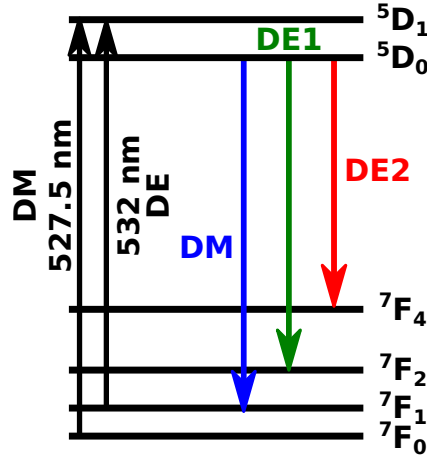


FIGURE 1.6 – Schéma de certaines transitions électroniques de l'europium.

De plus, à l'excitation, M. KASPERCZYK *et al.* ont montré qu'il est possible d'exciter sélectivement la résonance dipolaire électrique (${}^7F_1 \rightarrow {}^5D_1$) ou magnétique (${}^7F_0 \rightarrow {}^5D_1$) en plongeant l'europium dans un champ électrique à 532 nm ou magnétique à 527,5 nm respectivement (voir figure 1.6). Cette sélection est une conséquence de l'hamiltonien de l'interaction lumière-matière entre une charge neutre et un champ électromagnétique [Kas+15] :

$$H_{\text{int}} = -\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}(t) - \mathbf{m} \cdot \mathbf{B}(t) - [\mathbf{Q}\nabla] \cdot \mathbf{E}(t) - \dots \quad (1.6)$$

Où \mathbf{p} est le moment dipolaire électrique, \mathbf{m} le moment dipolaire magnétique et \mathbf{Q} le moment quadripolaire électrique (tenseur). \mathbf{E} et \mathbf{B} sont respectivement les champs électrique et magnétique.

Les règles de sélection impliquent une orthogonalité entre les termes électrique et magnétique. De ce fait, seule la composante électrique de la

1.2. Objectif : contrôle de la photoluminescence d'émetteurs quantiques

lumière peut exciter la transition dipolaire électrique et seule la composante magnétique peut exciter la transition dipolaire magnétique.

Pour le montrer, M. KASPERCZYK *et al.* ont cartographié un grain d'oxyde d'yttrium dopé à l'euprium en le balayant avec un faisceau de polarisation azimutale qui présente l'avantage d'avoir les composantes électrique et magnétique spatialement séparées sous forte focalisation (voir cartes et profils du bas de la figure 1.10). Ainsi, ils ont pu former les images des champs électriques à 532 nm et magnétiques à 527,5 nm [Kas+15] (voir fig. 1.7). Ils se sont donc intéressés aux effets de pompe (paramètre P_{pompe} de l'équation 1.5).

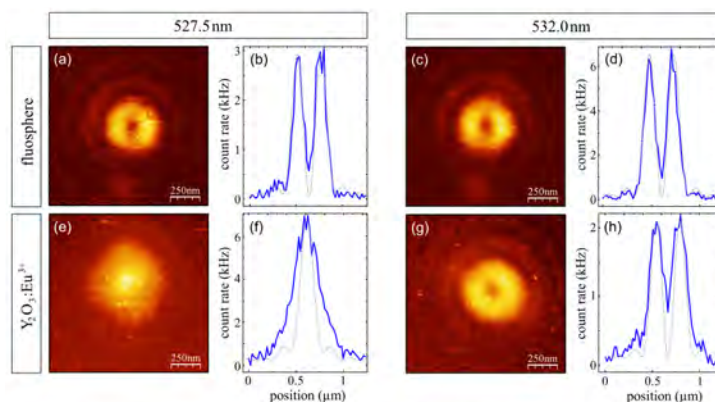


FIGURE 1.7 – Cartographies de photoluminescence d'une fluosphere (émetteur dont les transitions sont uniquement dipolaires électriques) et d'un grain de $Y_2O_3 : Eu^{3+}$ balayés par un faisceau de polarisation azimutale aux longueurs d'onde de résonances dipolaire magnétique (527,5 nm) et électrique (532 nm). Figure tirée de la publication de M. KASPERCZYK *et al.* [Kas+15].

De plus, cet émetteur présente des raies d'émissions intenses dans le domaine visible de 580 à 650 nm (voir figure 1.8). La désexcitation se fait alors à partir du niveau 5D_0 par trois canaux radiatifs principaux :

- Une transition dipolaire magnétique (DM) centrée sur 590 nm ($^5D_0 \rightarrow ^7F_1$).
- Une première transition dipolaire électrique (DE1) centrée sur 610 nm ($^5D_0 \rightarrow ^7F_2$).
- Une deuxième transition dipolaire électrique (DE2) centrée sur 700 nm ($^5D_0 \rightarrow ^7F_4$).

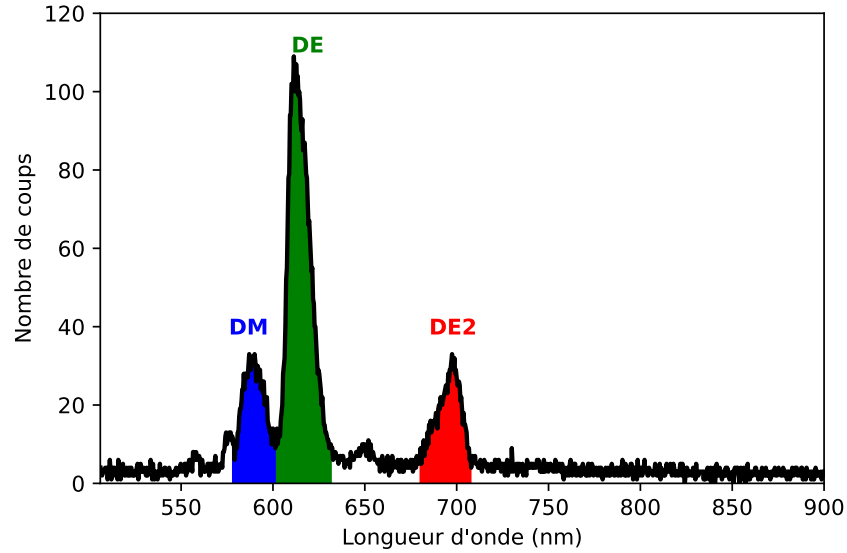


FIGURE 1.8 – Spectre de photoluminescence de la couche de $\text{Gd}_2\text{O}_3 : \text{Eu}^{3+}$ (excitation à 532 nm).

Ces trois principales raies d'émissions sont de natures dipolaire électrique ou magnétique, cela signifie que leur sensibilité à la densité locale d'états photoniques sera différente selon qu'elle soit électrique ou magnétique. C'est ce qu'ont montré M. SANZ-PAZ *et al.* [San+18] qui ont placé un nano-cristal dopé à l' Eu^{3+} sous deux antennes gravées sur des pointes *SNOM*⁴ : une première gravée pour avoir une *LDOS* électrique et une deuxième pour avoir une *LDOS* magnétique. Ils ont ainsi pu mettre en évidence l'influence de la densité locale d'états photoniques sur les chemins de désexcitation de l'euro-pium (c'est à dire le terme ϕ de l'équation 1.5).

Dans les travaux que nous présentons ici, nous nous intéressons aussi bien aux effets d'excitation (avec des excitatrices particulières couplées à des antennes résonantes) qu'aux effets d'émissions de l'euro-pium (avec des antennes de silicium qui supportent des *LDOS*).

1.2.3 Faisceaux de polarisations azimuthale et radiale

Trois types d'excitatrices sont utilisées pour l'étude présentée dans cette thèse, et ce à deux longueurs d'ondes différentes.

4. Acronyme anglais de « Scanning Near-field Optical Microscope ».

1.2. Objectif : contrôle de la photoluminescence d'émetteurs quantiques

Ces deux longueurs d'ondes sont 532 et 527,5 nm pour exciter l'euprômium à résonance dipolaire électrique ou magnétique respectivement.

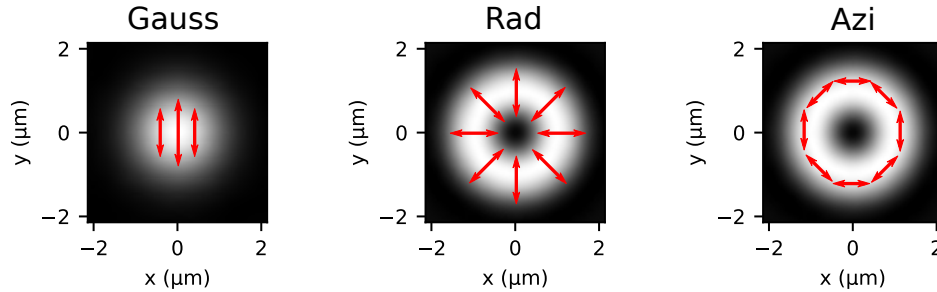


FIGURE 1.9 – Schéma de l'état de polarisation des faisceaux de polarisations linéaire (Gauss), azimutale (Azi) et radiale (Rad) dans l'approximation paraxiale.

Les excitatrices sont : un faisceau gaussien de polarisation linéaire, un faisceau vectoriel cylindrique de polarisation azimutale et un de polarisation radiale. Le faisceau gaussien n'a plus besoin d'être présenté.

Les faisceaux vectoriels cylindriques de polarisation ont une particularité : leur polarisation n'est pas homogène dans le plan d'onde (voir figure 1.9).

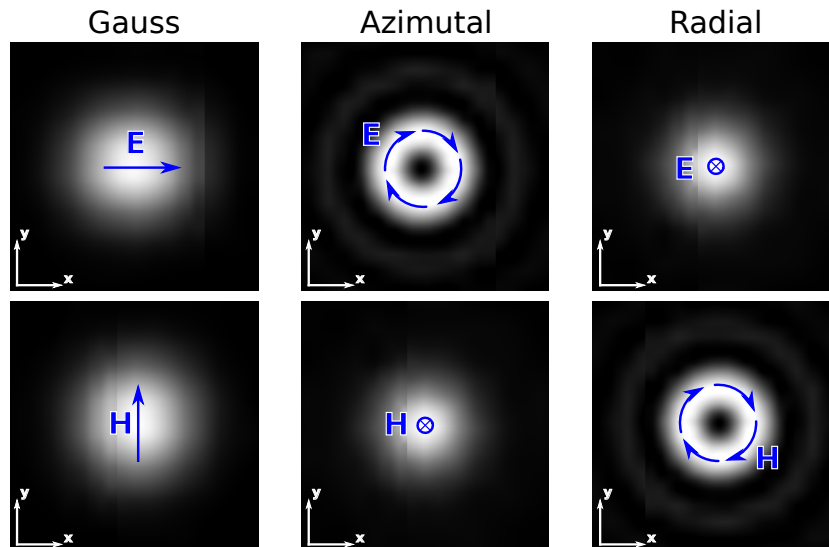


FIGURE 1.10 – Champs électrique et magnétique des faisceaux de polarisations linéaire (Gauss), azimutale et radiale fortement focalisés.

Le long d'un chemin autour de l'axe optique la polarisation reste linéaire mais réalise une rotation complète de $\pm 2\pi$: on dit qu'ils ont une charge topologique de ± 1 . Cette polarisation ne peut donc être définie au centre, il en résulte une singularité où l'intensité est nécessairement nulle.

Lorsqu'ils sont fortement focalisés, les champs électrique et magnétique de ces deux faisceaux sont spatialement séparés (voir figure 1.10). Pour le cas du faisceau azimutal par exemple, le champ électrique tourne dans le plan transverse (xOy) autour de l'axe optique. En cohérence avec le théorème de Maxwell-Faraday, le champ magnétique est maximal au centre et orienté longitudinalement, selon z. Le cas radial est symétrique à celui-ci : le maximum du champ électrique est le long de l'axe optique, là où le champ magnétique est nul.

Ces faisceaux nous offrent un large de choix de paramètres pour notre étude. Comme il sera détaillé dans le chapitre suivant, le champ proche optique autour des nano-structures de silicium est très différent selon la polarisation de l'onde incidente. Ces faisceaux, avec le bon choix de structure, nous permettent alors de jouer avec le paramètre de pompe de l'équation 1.5.

De plus, ces structures ont leur propre densité locale d'états photoniques, qui est révélée en travaillant en régime de saturation (à forte puissance), il est alors possible d'exploiter le paramètre d'émission.

Cette thèse propose une étude complète des effets d'excitation et d'émission sur la photoluminescence d'euporium couplé à des nano-antennes de silicium en vue de comprendre les phénomènes mis en jeu et de pouvoir les exploiter par la suite.

Chapitre 2

Propriétés optiques de nano-sphéroïdes de silicium éclairées par des faisceaux vectoriels cylindriques

Lorsqu'une structure diélectrique à fort indice de réfraction est éclairée par une onde électromagnétique et qu'elle remplit certaines conditions (voir chapitre 1), des modes de résonance optique de Mie peuvent se développer au sein de la structure.

Il a aussi été montré, notamment par MANNA U. *et al.* qui ont mesuré la diffusion de boules de silicium éclairées par des faisceaux vectoriels cylindriques de polarisations azimutale et radiale [Man+20], que la nature de l'excitatrice avait un rôle important dans le contrôle de ces modes [WBL15].

Dans ce chapitre, nous présentons un outil numérique pour montrer l'incidence de l'excitatrice sur le contrôle des modes de résonances de Mie. Nous allons plus loin en étudiant les effets de l'anisotropie de forme de nano-sphéroïdes de silicium éclairées par des faisceaux vectoriels cylindriques, démontrant ainsi la capacité d'ingénierie des résonances multipolaires électrique et magnétique. Une étude détaillée des propriétés en champ proche et en champ lointain de ces nano-structures est également proposée.

2.1 Résonances de Mie

Il existe plusieurs types de résonances, électrique ou magnétique ; dipolaires ou d'ordres supérieurs : quadrupolaire, hexapolaire, octopolaire, *etc.*. Le spectre de diffusion de la lumière par une structure, par exemple une boule de silicium de 165 nm éclairée par un faisceau gaussien de polarisation linéaire, montre des résonances caractérisées par des pics d'intensité de diffusion à des longueurs d'ondes particulières (voir figure 2.1).

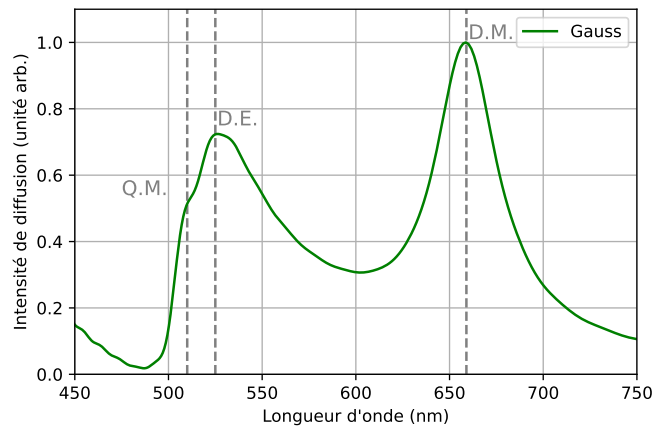


FIGURE 2.1 – Spectre de diffusion d’une boule de silicium de 165 nm de diamètre éclairée par un faisceau gaussien de polarisation linéaire.

Les deux premières résonances de Mie sont la résonance dipolaire magnétique (DM) de plus grande longueur d’onde, à 658 nm, et ensuite la résonance dipolaire électrique (DE) à 525 nm. L’épaule de la résonance dipolaire électrique correspond à une résonance quadrupolaire magnétique (QM) à 510 nm qui apparaît ici car la structure est suffisamment grande. Réduire sa taille rendrait ce mode inaccessible dans cette gamme de longueur d’onde.

Résonance dipolaire électrique

À la résonance dipolaire électrique, voir figure 2.2, le champ électromagnétique de la lumière incidente est confiné dans la structure et le champ électrique oscille dans une direction privilégiée parallèlement à la polarisation le long de l'axe x . Le champ magnétique induit tourne alors autour de l'axe x , donc dans le plan (yOz) .

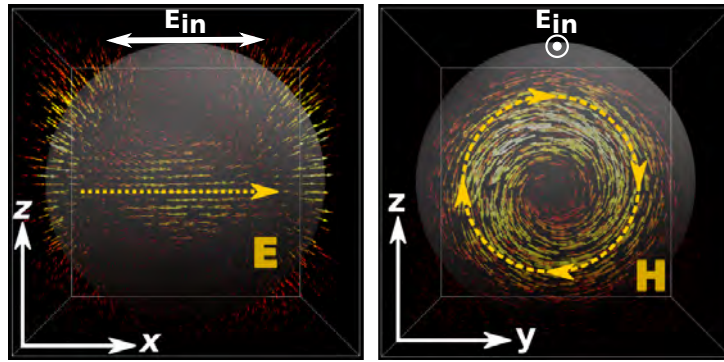


FIGURE 2.2 – Cartes de champ électrique (à gauche) et magnétique (à droite) dans une boule de silicium de 165 nm de diamètre éclairée par un faisceau gaussien de polarisation linéaire à la longueur d'onde de 525 nm (à la résonance DE). E_{in} est le champ électrique incident.

Résonance dipolaire magnétique

À la résonance dipolaire magnétique (voir figure 2.3), le champ électrique oscille en cercle autour de l'axe y , dans le plan (xOz) ; induisant une oscillation du champ magnétique dans une direction perpendiculaire au plan de rotation, selon l'axe y , en accord avec l'équation de Maxwell-Faraday :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$$

Bien que le matériau ne soit pas magnétique, l'oscillation du champ électrique formant une boucle de courant de déplacement conduit à une configuration analogue à un dipôle magnétique.

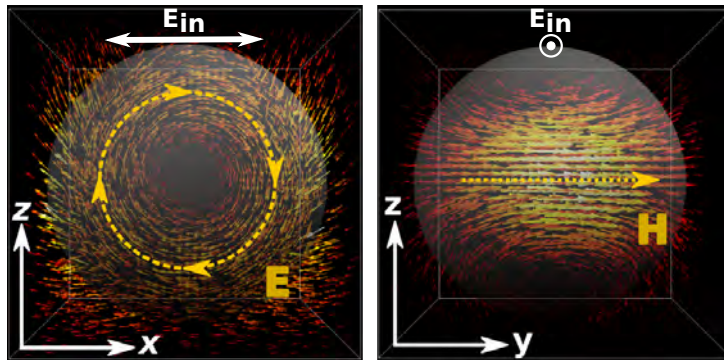


FIGURE 2.3 – Cartes de champ électrique (à gauche) et magnétique (à droite) dans une boule de silicium de 165 nm de diamètre éclairée par un faisceau gaussien de polarisation linéaire à la longueur d’onde de 658 nm (à la résonance DM). E_{in} est le champ électrique incident.

Résonance quadrupolaire magnétique

À la résonance quadrupolaire magnétique (voir figure 2.4), le champ électrique oscille en cercle à deux hauteurs différentes dans la boule et en opposition de phase. Cela induit deux oscillations du champ magnétique au centre de ces cercles, on obtient alors deux dipôles magnétiques oscillants de manière colinéaire en opposition de phase. On parle alors de quadrupôle magnétique.

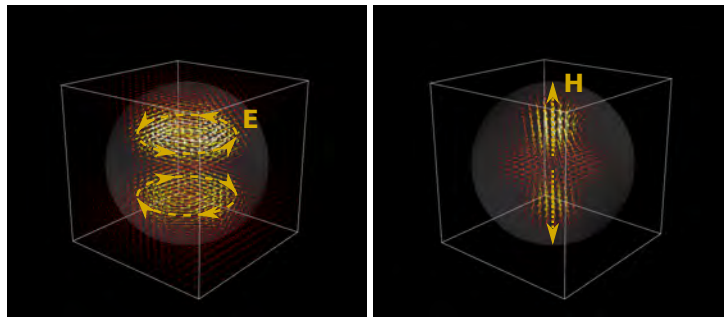


FIGURE 2.4 – Cartes de champ électrique (à gauche) et magnétique (à droite) dans une boule de silicium de 165 nm de diamètre éclairée par un faisceau de polarisation azimutale à la longueur d’onde de 510 nm (à la résonance QM). E_{in} est le champ électrique incident.

2.2 Faisceaux vectoriels cylindriques et simulation numérique

Les faisceaux vectoriels cylindriques possèdent une distribution hétérogène de la direction de polarisation du champ électrique. Celle-ci est représentée dans chacun des cas, azimutal et radial, sur la figure 2.5. Cette symétrie cylindrique implique qu’au centre, c’est à dire le long de l’axe optique, ni la direction de polarisation, ni la phase de la composante transverse du champ électrique n’y sont définies. En conséquence, en régime paraxial, ces faisceaux se caractérisent par une intensité nulle au centre et un profil transverse en forme de « doughnut ».

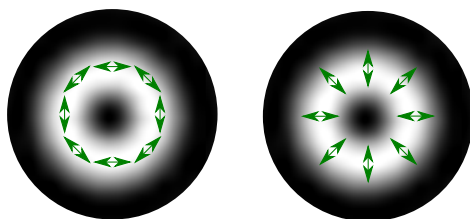


FIGURE 2.5 – Schéma des faisceaux vectoriels cylindriques azimutal (à gauche) et radial (à droite) dans le régime paraxial. Dans les deux cas, en blanc est représentée l’intensité et en vert la direction du champ électrique.

En vue d’appréhender la réponse de systèmes à ces types d’excitations à l’aide de simulations numériques, il nous faut choisir et définir une formulation analytique de ces faisceaux à implémenter dans nos codes.

2.2.1 Formulation analytique de faisceaux vectoriels cylindriques

Le modèle analytique utilisé est issu des modes de Laguerre-Gauss focalisés LG_{lp} , et plus particulièrement avec le nombre radial $p = 0$ et le moment orbital angulaire $l = \{-1, 0, 1\}$ ¹. Il existe d’autres méthodes fondées notamment sur une correction à l’ordre n des composantes du champ [YY07; CC11; BA94] ou encore sur la « complex source-point method » [Wie+17a]. L. NOVOTNY et B. HECHT proposent également une représentation du champ

1. À noter que le mode LG_{00} correspond au mode fondamental du faisceau gaussien.

optique paraxial focalisé par une lentille aplanaire [NH06]. Cette dernière méthode a également été implémentée par l'équipe dans la bibliothèque Python MEEP². Elle a l'avantage d'avoir un domaine de validité plus important pour les très grandes ouvertures numériques (supérieures à 0,9) mais est beaucoup plus coûteuse en temps de calcul. Ci-dessous je présente la méthode de Laguerre-Gauss pour laquelle j'ai personnellement participé à son implémentation dans MEEP. L'équation 2.1 montre la fonction de Laguerre-Gauss en coordonnées cylindriques dans le cas du nombre radial $p = 0$ et pour un moment orbital $l = \{-1, 0, 1\}$.

$$u_l(\rho, \varphi, z) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{w_0 \times M^2}{w(z)} \left(\frac{\sqrt{2}\rho}{w(z)} \right)^{|l|} \exp\left(-\frac{\rho^2}{w^2(z)}\right) \exp\left(i \frac{k\rho^2}{2R(z)}\right) \exp\left[-2i \arctan\left(\frac{z}{z_R}\right)\right] \exp(il\varphi) \quad (2.1)$$

Où $w(z) = w_0 \sqrt{1 + (z/z_R)^2}$ et $R(z) = z [1 + (z/z_R)^2]$, w_0 est le rayon à $1/e$ du mode fondamental dans le plan de focalisation³, M^2 est le facteur de qualité [Sie98], $z_R = \pi w_0^2 / (\lambda \times M^2)$ est la distance de Rayleigh, k et λ sont respectivement le nombre d'onde et la longueur d'onde.

Le champ électrique d'un faisceau vectoriel cylindrique de polarisation azimutal peut alors être défini avec une combinaison linéaire de l'équation 2.1 [NH06], on obtient alors l'équation 2.2 :

$$\mathbf{E}_{\text{Azi}} = \frac{u_1 + u_{-1}}{2i} \mathbf{e}_x + \frac{u_1 - u_{-1}}{2} \mathbf{e}_y \quad (2.2)$$

Et dans le cas de la polarisation radiale, nous obtenons l'équation 2.3.

$$\mathbf{E}_{\text{Rad}} = \frac{u_1 - u_{-1}}{2i} \mathbf{e}_x + \frac{u_1 + u_{-1}}{2} \mathbf{e}_y \quad (2.3)$$

À noter que dans le régime paraxial, la composante longitudinale selon \mathbf{e}_z est nulle.

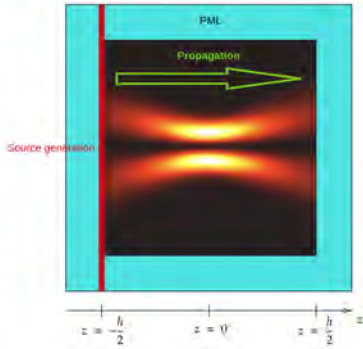
2. MEEP est une bibliothèque de calcul *FDTD*, les détails sont donnés dans la section 2.2.2.

3. Appelé « waist ».

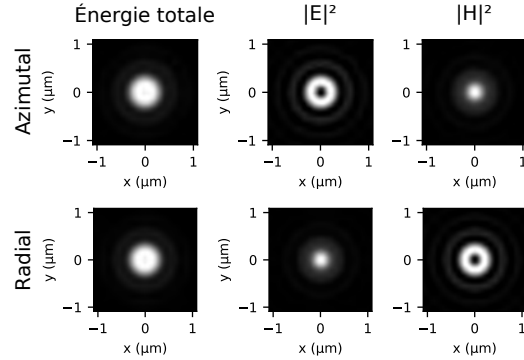
2.2.2 Utilisation de la bibliothèque Meep et formulation de faisceaux vectoriels cylindriques

Les fonctions de Laguerre-Gauss sont vraies dans le régime paraxial et peuvent être utilisées pour définir l'amplitude complexe d'une source électrique ou magnétique dans un plan orthogonal à la propagation avant ou après le plan de focalisation. Elles définissent les conditions initiales du calcul. Nous utilisons la bibliothèque Python MEEP qui utilise la méthode *FDTD*⁴ pour calculer les équations de Maxwell dépendantes du temps et résoudre ces équations de proche en proche dans l'espace et le temps [Osk+10]. Le terme de phase $\exp(ik\rho^2/2R(z))$ de l'équation 2.1 définit le rayon de courbure de la surface équiphase et assure la focalisation du faisceau.

On déclare donc une source dans un plan loin du plan de focalisation ($|z| > z_R$) et l'onde issue de cette source se propage durant la simulation, telle que représentée dans la figure 2.6a. La source est générée dans l'air en $z = -\frac{h}{2}$, avec h la taille de la cellule. Et se propage selon z croissant, le *waist* est en $z = 0$. En bleu, la *PML*⁵ entoure la cellule et permet d'éviter les effets de bord.



(a) Coupe de la cellule dans le plan (\vec{e}_z, \vec{e}_x) . En couleur, l'intensité du champ électrique pour un faisceau de polarisation azimutale.



(b) Intensités calculées dans le plan $z = 0$ avec une ouverture numérique de 0,9.

FIGURE 2.6

4. Acronyme anglais de : « Finite Difference Time Domain », méthode de calcul de différences finies dans le domaine temporel.

5. Acronyme anglais de « Perfectly Matched Layers ».

On remarque alors, pour le cas azimutal, que le champ électrique forme un anneau autour de l'axe de propagation du faisceau (voir figure 2.6b). Et le cas de la polarisation radiale est totalement symétrique, c'est le champ magnétique et non le champ électrique qui forme un anneau dans le plan, la composante longitudinale du champ électrique n'est donc pas nulle. Les résultats de simulation montrent que même si la source est définie uniquement dans le plan transverse, la méthode *FDTD* de propagation des ondes permet de rendre compte de la prédominance dans le plan focal de la composante longitudinale du champ magnétique (électrique) dans le cas azimutal (radial) et de la séparation des composantes électrique et magnétique associées.

Nous avons estimé que, pour une valeur choisie du facteur qualité M^2 [LFZ13], le faisceau généré par MEEP avec la méthode paraxiale de Laguerre-Gauss était acceptable pour une ouverture numérique de 0,9. Au delà, l'approche de L. NOVOTNY et B. HECHT [NH06] sera préférée.

Notons qu'il est possible d'écrire une relation entre les champs électrique et magnétique de ces deux faisceaux :

$$\mathbf{E}_{\text{Azi}} = Z \mathbf{H}_{\text{Rad}} \quad (2.4)$$

$$\mathbf{E}_{\text{Rad}} = Z \mathbf{H}_{\text{Azi}} \quad (2.5)$$

Avec $Z = \sqrt{\mu/\varepsilon}$ l'impédance de l'onde où μ et ε sont respectivement les perméabilités magnétique et électrique du milieu. Ces relations sont particulièrement intéressantes pour nos travaux puisque dans la bibliothèque MEEP que nous utilisons, l'impédance de l'onde est normalisée ($Z = 1$). En conséquence, la comparaison entre les amplitudes électrique et magnétique peut se faire directement. Un autre intérêt majeur est que pour les deux polarisations, les composantes électriques et magnétiques sont spatialement séparées dans le plan focal de manière complémentaire.

2.3 Résultats numériques : cas de sphéroïdes de silicium

2.3.1 Cas de la boule de silicium : contrôle des résonances de Mie

Sélection des résonances de Mie par l'excitation

Afin de tester nos codes, considérons dans un premier temps le cas simple d'une boule de silicium. Le spectre de diffusion de Mie d'une boule de silicium de 165 nm de diamètre éclairée par un faisceau gaussien de polarisation linéaire focalisé au centre de la structure a été simulé. La courbe de diffusion sous excitation gaussienne (en vert dans la figure 2.7) est très comparable à celles proposées dans la littérature [Man+20 ; WBL15], validant ainsi notre simulation.

Nous observons trois résonances de Mie dans le visible : la résonance dipolaire magnétique à 658 nm, la résonance dipolaire électrique à 525 nm et un épaulement à 510 nm correspondant à une résonance quadrupolaire magnétique.

Nous éclairons maintenant la structure avec une polarisation radiale et azimutale, obtenant respectivement les courbes bleue et orange de la figure 2.7.

Lorsque l'excitatrice est de polarisation radiale (courbe bleue), un seul pic de résonance est visible sur le spectre de diffusion entre 450 et 750 nm. Il correspond à une résonance dipolaire électrique à 528 nm, soit à la même position spectrale que la résonance DE pour une excitation de polarisation linéaire.

Enfin, le spectre de diffusion pour une excitation azimutale montre cette fois deux résonances : la première à 668 nm, la résonance dipolaire magnétique (à la même longueur d'onde que pour une polarisation linéaire) et une résonance à 510 nm correspondant à une résonance quadrupolaire magnétique très visible cette fois car isolée du mode DE non-excité par le faisceau de polarisation azimutale.

En conséquence, en changeant la polarisation de l'excitatrice, il est possible de sélectionner la nature des résonances qui se développent dans la structure : magnétiques avec le faisceau azimutal et électriques avec le faisceau radial.

Il est donc possible d'exciter sélectivement une résonance ou une autre.

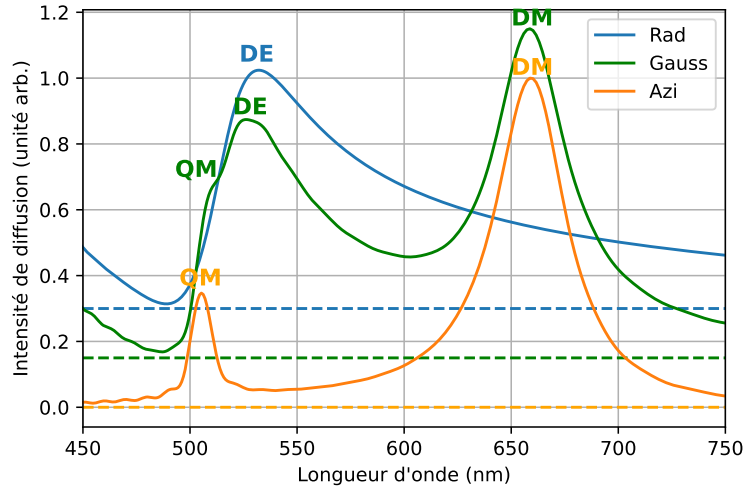


FIGURE 2.7 – Spectres de diffusion d’une boule de silicium de 165 nm de diamètre. En pointillé, l’origine de chaque courbe (décalées verticalement pour des raisons de lisibilité).

Pour aller plus loin, nous étudions les comportements en champs lointain et proche de ces modes selon l’excitatrice.

Contrôle de la radiation en champ lointain

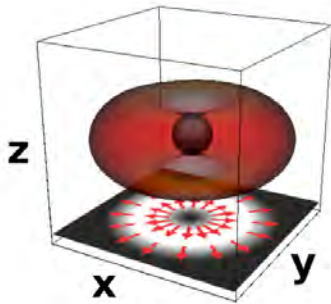
Nous avons développé un code permettant de calculer et tracer le diagramme de radiation en champ lointain de structures éclairées par une onde à une longueur d’onde donnée.

Il permet de calculer les champs électrique et magnétique autour de la structure, puis la propagation de ces champs jusqu’à une distance de 1000λ . Ainsi, on obtient une sphère de rayon 1000λ avec en chaque point une valeur du flux du vecteur de Poynting calculé à partir des valeurs des champs électrique et magnétique propagés. Le module du vecteur de Poynting est ensuite tracé en coordonnées sphériques. L’intensité (c’est à dire la densité de flux d’énergie) est ainsi représentée pour chaque angle.

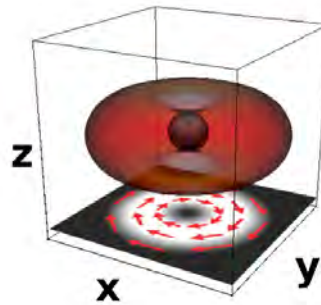
2.3. Résultats numériques : cas de sphéroïdes de silicium

La figure 2.8 rassemble les diagrammes de radiation normalisés pour les quatre résonances suivantes :

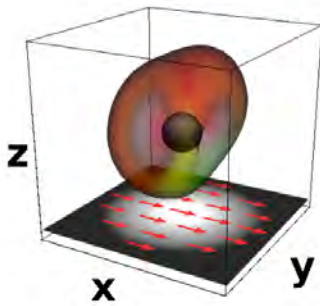
- DE sous excitation de polarisation linéaire à 525 nm.
- DM sous excitation de polarisation linéaire à 658 nm.
- DE sous excitation de polarisation radiale à 532 nm.
- DM sous excitation de polarisation azimuthale à 658 nm.



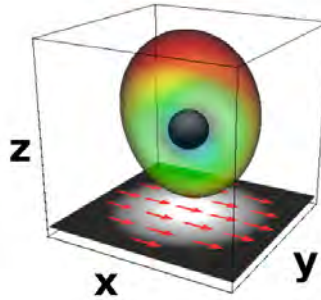
(a) Diagramme de radiation pour une excitation de polarisation radiale à 532 nm (résonance DE).



(b) Diagramme de radiation pour une excitation de polarisation azimuthale à 658 nm (résonance DM).



(c) Diagramme de radiation pour une excitation de polarisation linéaire à 525 nm (résonance DE).



(d) Diagramme de radiation pour une excitation de polarisation linéaire à 658 nm (résonance DM).

FIGURE 2.8

On remarque que la radiation a lieu dans le plan (xOy) dans le cas des faisceaux azimutal et radial. Et pour une excitation de polarisation linéaire (gaussienne), la radiation se fait dans le plan (yOz) à la résonance DE et dans le plan (xOz) à la résonance DM. Il est intéressant de noter que, due à la symétrie de l'excitatrice autour de l'axe optique z, le motif de radiation des dipôles électriques pour la polarisation radiale (fig. 2.8a) et magnétique pour la polarisation azimutale (fig. 2.8b) sont plus proches de la radiation obtenue par un dipôle parfait que la radiation obtenue avec le faisceau gaussien (figures 2.8d et 2.8c). Le lecteur peut se référer à l'annexe A pour de plus amples informations sur cet effet.

Ainsi en changeant de polarisation, pour la même résonance, il est possible de changer le diagramme de radiation, donc de contrôler la direction de la lumière diffusée en champ lointain. Il est également possible de conserver les mêmes directions de radiation à deux longueurs d'ondes différentes (DM azimutal et DE radial).

Contrôle de la répartition spatiale des champs proches électrique et magnétique

En vue de coupler ces antennes avec des émetteurs quantiques pour contrôler leurs propriétés de photoluminescence (brillance, nature électrique ou magnétique, *etc.*), il faut nous intéresser au comportement de ces structures en champ proche. Afin de compléter notre caisse à outils numériques, nous avons également écrit un code permettant de calculer l'intensité des champs proches électrique et magnétique à 5 nm⁶ autour de la structure de silicium excitée par une onde de polarisation donnée.

La figure 2.9 montre les résultats importants pour une boule de 165 nm de diamètre éclairée par une polarisation linéaire, radiale et azimutale à 532 nm, longueur d'onde d'excitation des émetteurs à base d'euporium⁷.

Nous observons que la position des exaltations locales de champ électrique et magnétique sont différentes selon la nature de l'excitatrice. Pour la polarisation linéaire, l'exaltation locale du champ électrique est située dans le plan (xOz) (fig. 2.9a) tandis que l'exaltation locale de champ magnétique est localisée dans le plan (yOz) (fig. 2.9d). Pour les polarisations radiale et azimutale,

6. Distance correspondant à une épaisseur caractéristique proche de nos systèmes expérimentaux.

7. Très exactement, 532 nm est la longueur d'onde de la transition dipolaire électrique de l'euporium à l'excitation, voir chapitre 1.

on obtient une symétrie des intensités de champ électrique et magnétique.

Sur le pôle nord, pour la polarisation radiale (fig. 2.9b), l'intensité du champ électrique est forte tandis que pour la polarisation azimutale, c'est le champ magnétique qui est intense en ce point (fig. 2.9f). L'intensité du champ magnétique est située à l'équateur pour la polarisation radiale (fig. 2.9e) et l'intensité du champ électrique est sur le « cercle polaire » pour la polarisation azimutale (en bleu sur la figure 2.9c). À noter que dans ce cas, le mode représenté n'est pas un mode résonant. Pour cette excitation, le mode résonant le plus proche est le quadrupôle magnétique, ce qui explique la position des zones d'exaltation.

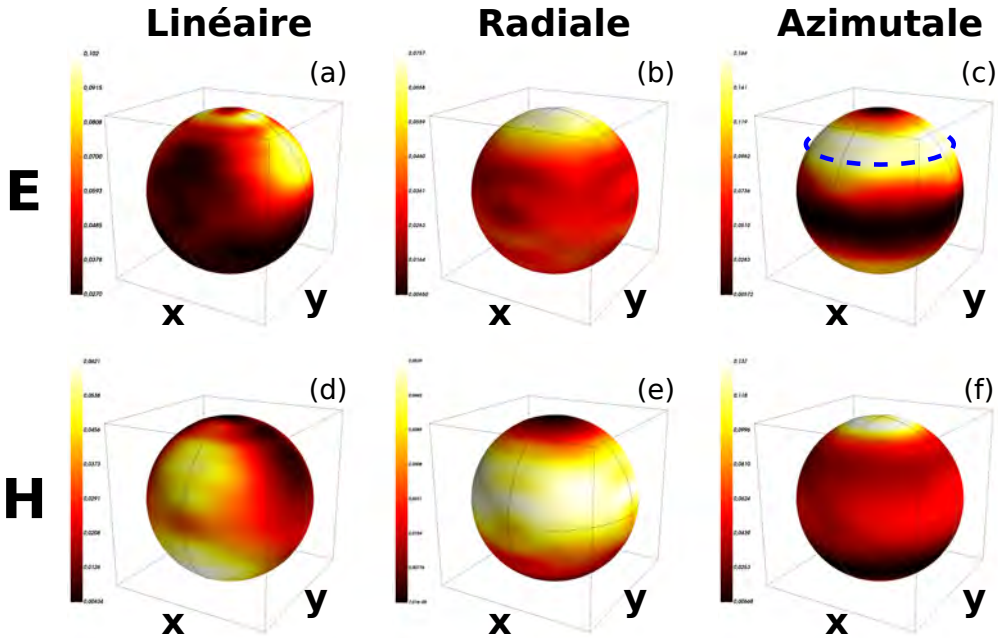


FIGURE 2.9 – (a), (b) et (c) Intensité du champ électrique à 5 nm autour de la boule de silicium de 165 nm de diamètre pour une excitation à 532 nm. (d), (e) et (f) Intensité du champ magnétique à 5 nm autour de la même boule de silicium pour une excitation à 532 nm.

Cette information nous montre qu'en changeant la polarisation de l'onde incidente à longueur d'onde constante, nous avons un contrôle spatial des exaltations locales de champ, ainsi un émetteur supportant des transitions électriques et magnétiques, comme les terres rares [BMB19 ; Cha+20], placé

à un endroit de la structure ressentira une valeur de champ proche électrique ou magnétique différente selon l'excitation.

Nous avons désormais un ensemble d'outils numériques qui nous permettent de calculer les spectres de diffusion, le diagramme de radiation en champ lointain ainsi que les exaltations locales de champs proches d'une structure pour trois types d'excitations différentes.

Ces simulations nous aiderons à optimiser la fabrication de futurs échantillons mais également à comprendre la réponse expérimentale de nos antennes de silicium couplées à des émetteurs quantiques.

2.3.2 Anisotropie de forme et ingénierie de la longueur d'onde de résonance du mode

Jusqu'à présent, nous ne nous sommes intéressés qu'au cas de la boule, qui est un système isotrope de haute symétrie, permettant ainsi de valider notre approche en comparant nos résultats avec la littérature.

Nous étendons maintenant l'étude à l'anisotropie de forme, en nous intéressant en particulier à des sphéroïdes. Les dimensions de ces structures sont choisies pour avoir une déformation selon un axe en conservant un volume constant. Ce choix a été fait pour conserver le même nombre de dipôles élémentaires dans la structure et ainsi pouvoir comparer les effets de la brisure de symétrie en s'affranchissant des effets dus à la variation de volume, comme des décalages en énergie des résonances.

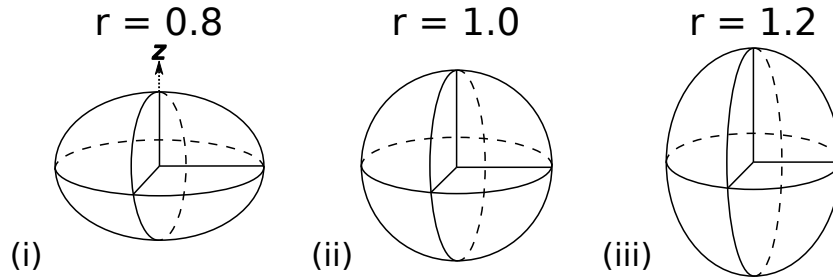


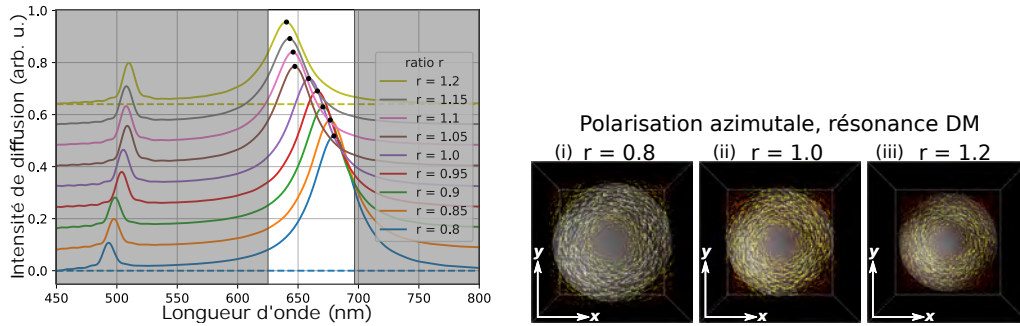
FIGURE 2.10 – Schémas de la forme de la sphère déformée avec trois ratios r de déformation.

La figure 2.10 montre les déformations selon l'axe z , l'axe de propagation de l'onde incidente. La forme de la sphéroïde ainsi obtenue est définie par son ratio r . Si $r > 1$, correspondant au cas de la figure 2.10 (iii), on tend

2.3. Résultats numériques : cas de sphéroïdes de silicium

alors vers une forme de ballon de rugby (sphéroïde prolata). Si au contraire, $r < 1$, cas de la figure 2.10 (i), ont tend cette fois vers une forme rappelant celle d'une sucrerie dont le nom débute par « Smart... » (sphéroïde oblate).

Intéressons nous d'abord au cas de la sphéroïde éclairée par une polarisation azimuthale avec une déformation selon l'axe longitudinal z .



(a) Courbes d'intensité de la diffusion de Mie d'une boule de silicium pour différents ratios. Excitation de polarisation azimuthale et déformation selon z . (b) Cartes du champ électrique à l'intérieur de la sphéroïde.

FIGURE 2.11

La figure 2.11a montre des courbes de diffusion de Mie de la structure éclairée par un faisceau azimuthal et déformée selon l'axe z pour des ratios allant de 0,8 à 1,2. Les résonances DM et QM sont visibles sur chacune des courbes. Nous observons une dérive de la position du pic de résonance dipolaire magnétique vers le bleu pour $r > 1$ et vers le rouge pour $r < 1$ en comparaison avec le cas $r = 1$.

Dans ces conditions, la coupe dans le plan (xOy) de la sphéroïde a une forme de disque (voir figure 2.11b). Alors, la géométrie est simple et partage le même plan que la polarisation azimuthale de l'onde.

Dans le plan équatorial (xOy), le rayon du disque est plus grand pour $r < 1$ et plus petit pour $r > 1$. La condition de résonance (ici dipolaire magnétique) étant : $nD \propto \lambda_{DM}$ avec n l'indice du silicium et D le diamètre du plan qui augmente (voir figure 2.11b), la longueur d'onde de résonance augmente donc elle aussi.

Comparaison entre les polarisations azimutale et linéaire

L'effet est inversé lorsque la polarisation de l'onde incidente est linéaire orientée selon l'axe x (cas du faisceau gaussien). Dans ce cas, le décalage de la résonance DM se fait dans l'autre sens comme le montre les courbes de diffusion de la figure 2.12. On distingue en haut (fig. 2.12a) la diffusion de Mie de la sphéroïde déformée pour des ratios allant de 0,8 à 1,2 éclairée par un faisceau gaussien de polarisation linéaire orientée selon x , et en bas (fig. 2.12b), les courbes de diffusion pour les mêmes structures éclairées par un faisceau de polarisation azimutale.

Pour expliquer cette réponse à l'excitation de polarisation linéaire, on s'intéresse au déplacement électrique, mais cette fois, dans le plan (xOz) , plan représenté par une flèche bleue sur les sphéroïdes de gauche de la figure 2.12. Ce plan forme une ellipse qui est de plus petite dimension pour les ratios $r < 1$ impliquant une dérive en longueur d'onde vers le bleu et au contraire de plus grande dimension pour les ratios $r > 1$ impliquant cette fois une dérive vers le rouge.

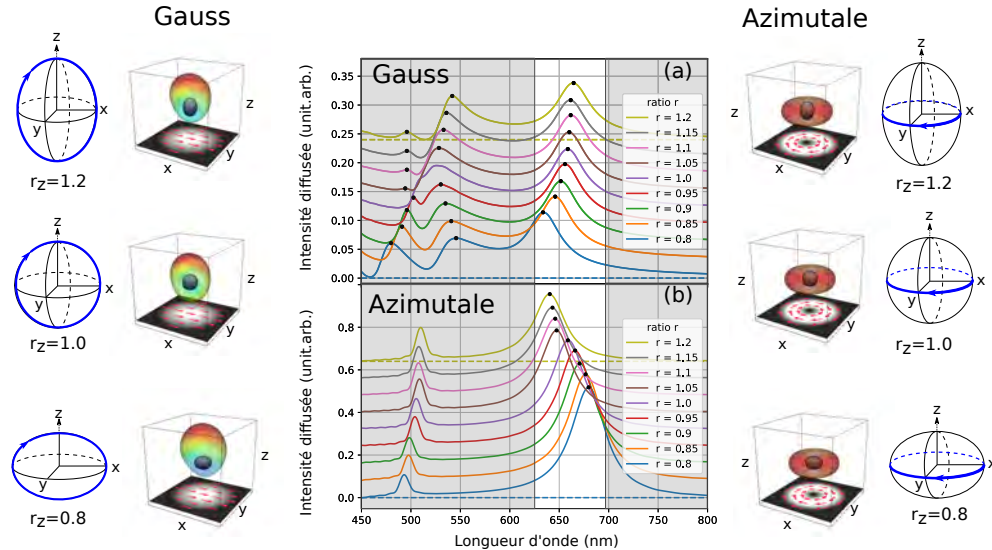


FIGURE 2.12 – Au centre, courbes de diffusion de Mie pour des sphéroïdes de ratios 0,8 à 1,2 déformées selon z . De part et d'autre, schémas des sphéroïdes et cartes de radiation en champ lointain.

En outre, la circulation du champ électrique est différente pour la polarisation azimutale et la polarisation linéaire. En conséquence, le diagramme

de radiation en champ lointain est différent. La radiation est très largement dirigée vers le plan (xOz) pour l'excitation gaussienne de polarisation linéaire (le dipôle magnétique oscillant étant aligné selon x) et est dans le plan (xOy) pour la polarisation azimuthale (le dipôle magnétique oscillant étant aligné selon z).

Ainsi, en changeant la polarisation de azimuthale à linéaire orientée selon x, pour une même déformation, il est possible de contrôler l'orientation de la radiation mais également la longueur d'onde de la résonance dipolaire magnétique.

Polarisation parallèle à la déformation : $\mathbf{P}_{//}$

L'histoire est différente lorsqu'on compare l'excitation radiale et linéaire pour la résonance dipolaire électrique.

Sous forte focalisation, la polarisation radiale est majoritairement longitudinale : $\mathbf{P} = P \cdot \mathbf{e}_z = \mathbf{P}_z$. Le faisceau gaussien est quant à lui de polarisation linéaire orientée selon l'axe x : $\mathbf{P} = P \cdot \mathbf{e}_x = \mathbf{P}_x$.

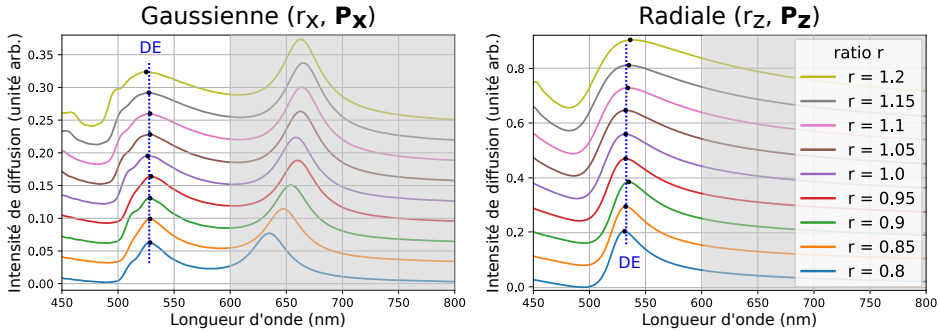


FIGURE 2.13 – Courbes de diffusions de Mie de sphéroïdes éclairées par une polarisation $\mathbf{P}_{//}$, parallèle à la déformation.

La figure 2.13 montre les courbes de diffusion de Mie des sphéroïdes de ratios allant de 0,8 à 1,2 déformées à gauche selon l'axe x et éclairées par le faisceau gaussien de polarisation \mathbf{P}_x , la polarisation est donc parallèle à l'axe de déformation, on la note $\mathbf{P}_{//}$. À droite, les sphéroïdes sont déformées selon l'axe z éclairées par un faisceau radial de polarisation \mathbf{P}_z , nous nous retrouvons à nouveau dans le cas $\mathbf{P}_{//}$.

Dans ces deux cas, les positions spectrales de la résonance dipolaire électrique sont quasi-identiques. Elle ne change pas de position spectrale

avec la déformation qui est toujours autour de 525 nm.

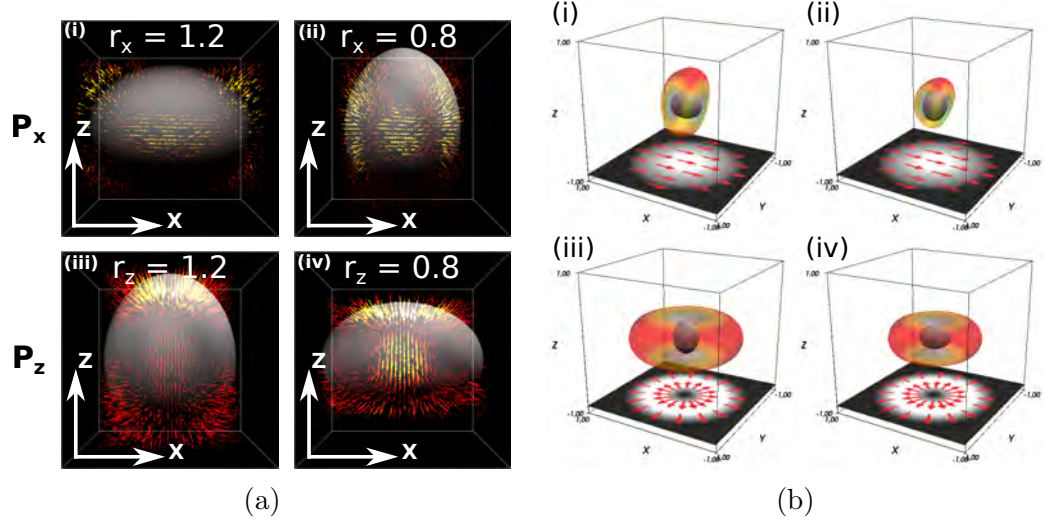


FIGURE 2.14 – (a) Champ électrique dans les structures. (b) Diagrammes de radiation. Dans chaque cas : (i) $r_x = 1,2$, \mathbf{P}_x , (ii) $r_x = 0,8$, \mathbf{P}_x , (iii) $r_z = 1,2$, \mathbf{P}_z , (iv) $r_z = 0,8$, \mathbf{P}_z .

Tout ceci trouve une explication en regardant à nouveau le courant de déplacement électrique dans la structure. Sur la figure 2.14a, nous observons que pour les cas extrêmes du ratio valant 0,8 et 1,2, le champ électrique oscille comme un dipôle quasi-parfait.

Cependant, la figure 2.14b montre que les diagrammes de rayonnement correspondants sont très différents entre les polarisations \mathbf{P}_x et \mathbf{P}_z . Bien que dans les quatre cas, les courants du champ électrique oscillent dans une direction privilégiée tels des dipôles à l'intérieur des structures.

Polarisation perpendiculaire à la déformation : \mathbf{P}_\perp

Comparons désormais les cas suivants :

- La déformation est exercée selon z , la polarisation est orientée selon x : r_z , \mathbf{P}_x (faisceau gaussien).
- La déformation est exercée selon x , la polarisation est orientée selon z : r_x , \mathbf{P}_z (faisceau radial).

Dans ces conditions, la polarisation est perpendiculaire à la déformation, on la note \mathbf{P}_\perp .

2.3. Résultats numériques : cas de sphéroïdes de silicium

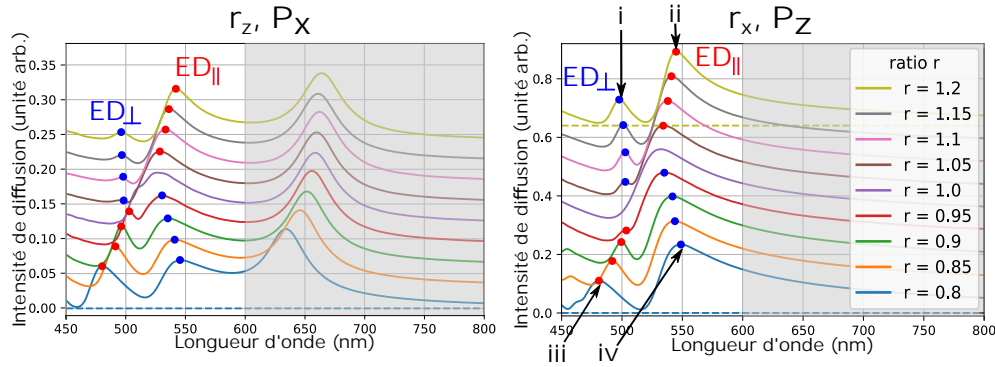


FIGURE 2.15 – Courbes de diffusions de Mie de sphéroïdes éclairées par une polarisation \mathbf{P}_\perp , perpendiculaire à la déformation.

La figure 2.15 montre les courbes de diffusion de Mie pour les deux cas \mathbf{P}_x et \mathbf{P}_z . Nous observons que lorsque le ratio augmente ou diminue, la résonance dipolaire électrique se scinde en deux résonances de nature dipolaire électrique mais associées à des rayonnements orthogonaux (voir figure 2.16). Plus la déformation est importante, plus ces deux résonances s'éloignent l'une de l'autre. $ED_{//}$ désigne les résonances qui rayonnent parallèlement à la direction de déformation de la sphéroïde et ED_\perp celles qui rayonnent perpendiculairement. Nous observons aussi que la position spectrale de la résonance $ED_{//}$ se déplace toujours vers le rouge avec le ratio croissant et la résonance ED_\perp vers le bleu.

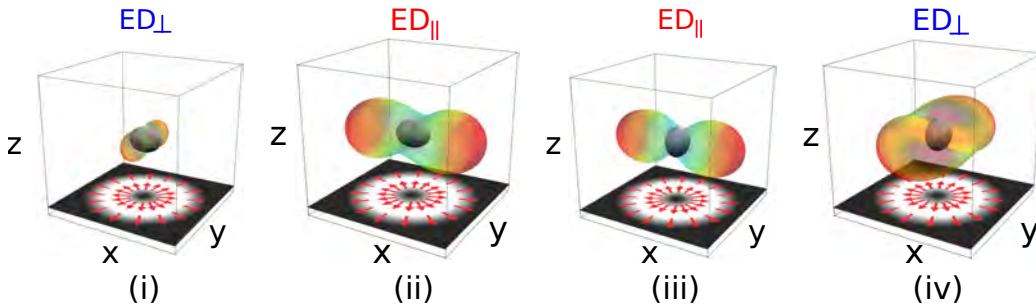


FIGURE 2.16 – Radiation en champ lointain pour les cas identifiés (i), (ii), (iii) et (iv) sur la figure 2.15.

En résumé, la figure 2.16 montre que pour les cas (i), (ii), (iii) et (iv) de la figure 2.15, pour lesquels la déformation se fait selon x , la radiation en champ

lointain se fait principalement soit parallèlement soit perpendiculairement à la déformation.

Dès lors, en plus du contrôle sur la position spectrale de la résonance que nous offre la déformation des sphéroïdes, la forme des sphéroïdes et la nature de l'excitation permettent une très haute directivité de la diffusion.

Enfin, nous souhaitons insister sur le résultat important suivant : en changeant la polarisation de l'onde incidente et la déformation de la sphéroïde, on peut passer d'une diffusion isotrope à quasi-unidirectionnelle (avec un contrôle de la direction selon x ou y).

Ce phénomène de directivité est dû à une interférence partiellement destructrice dans une direction.

Anapôle

La déformation de l'ellipsoïde éclairée par une polarisation linéaire ou radiale dans la direction du champ électrique de l'excitatrice provoque une séparation de la résonance dipolaire électrique en deux résonance dites DE_{\perp} et $DE_{//}$. Cette séparation laisse place un anapôle. Un anapôle est un mode non radiatif constitué de deux modes radiatifs qui interfèrent de manière destructive en champ lointain. Dans la majorité des cas, c'est une combinaison d'un dipôle électrique oscillant dans une direction et d'un dipôle toroïdal oscillant dans la même direction mais en opposition de phase [Mir+15 ; YB19 ; Par+20] (voir fig. 2.17).

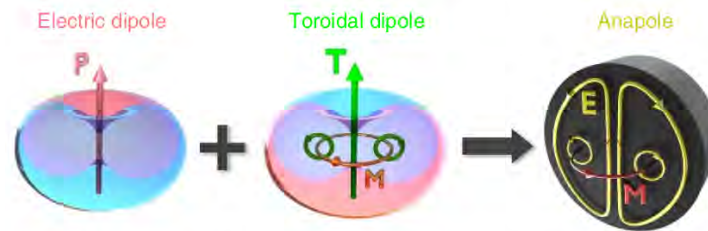


FIGURE 2.17 – La combinaison d'un dipôle électrique et d'un dipôle toroïdal permet d'obtenir un anapôle. Cette figure est extraite de la publication de A. E. MIROSHNICHENKO *et al.* [Mir+15].

La figure 2.18 montre les champs électrique et magnétique dans la sphéroïde déformée selon x avec un ratio de 1,2 et excitée par un faisceau radial

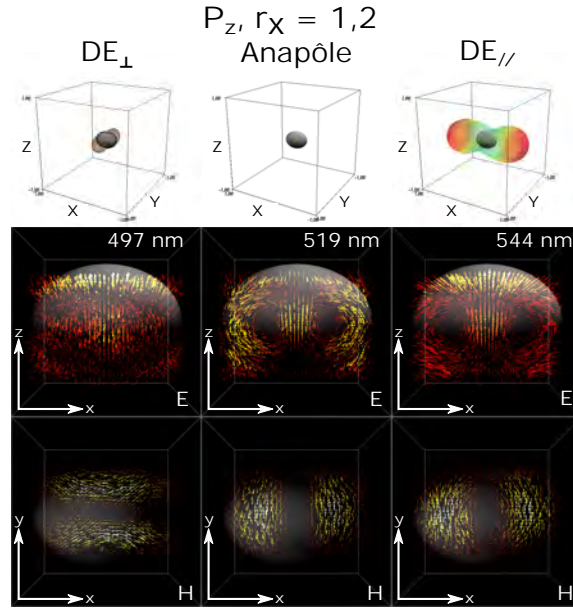


FIGURE 2.18 – Champs électrique et magnétique dans la sphéroïde et diagrammes de radiations pour différents modes excités.

(polarisation \mathbf{P}_z) aux longueurs d’ondes correspondantes aux modes DE $_{\perp}$, anapolaire et DE $_{//}$. La figure montre également la radiation en champ lointain de chacun de ces modes.

Il est intéressant de remarquer que le champ électrique dans la structure oscille dans une direction dans le cas des résonances dipolaires électriques mais qu’il forme deux boucles dans le cas de l’anapôle, induisant l’équivalent d’un quadripôle magnétique transverse⁸.

Dans notre cas, le système n’est donc pas composé d’un mode dipolaire électrique et d’un mode toroïdal mais d’un dipôle électrique et d’un quadripôle magnétique transverse qui oscille comme représenté sur la figure 2.19. A. MIROSHNICHENKO *et al.* ont montré qu’il était possible d’obtenir un anapôle avec cette combinaison de modes dans un cylindre plat [Mir+15], et qu’il était possible d’en contrôler la position spectrale en variant ses dimensions. Nous montrons de même avec des sphéroïdes.

En conclusion de ce chapitre, nous avons montré qu’en jouant sur les paramètres que sont la polarisation et la longueur d’onde de l’excitatrice

8. Dans le cas du quadripôle magnétique transverse, le champ magnétique forme deux dipôles magnétiques parallèles oscillant en opposition de phase.

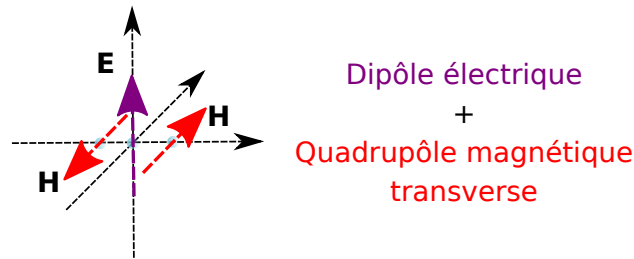


FIGURE 2.19 – Schéma des champs électrique et magnétique dans le mode anapolaire.

ainsi que la forme et la taille de la structure, nous pouvons sélectionner des modes radiatifs ou non radiatifs, contrôler la directivité de la diffusion mais également les exaltations locales des champs électrique et magnétique.

Ce dernier point est à considérer fortement dans l'optique de contrôler l'excitation d'un émetteur quantique placé dans le champ proche de l'antenne [BMB19; Pou+20; Alb+13].

De plus, l'euprium est une terre rare qui supporte des transitions dipolaires électrique et magnétique sensibles respectivement au champ électrique et au champ magnétique [BMB19; Cha+20; Kas+15]. La séparation spatiale de ces derniers avec les faisceaux cylindriques de polarisation apporte des degrés de liberté supplémentaires pour le contrôle de la photoluminescence de ces émetteurs.

Néanmoins, bien que les sphères et sphéroïdes présentent des caractéristiques intéressantes, la production à grande échelle et spatialement contrôlée de ce type de structure n'est pas des plus évidente. Nous nous dirigeons donc vers des structures faciles à produire par des techniques de lithographie électronique, des cylindres à section circulaire ou elliptique (analogie la plus proche avec des sphères et sphéroïdes).

Chapitre 3

Aspects techniques : échantillons, banc expérimental et traitement des données

Une partie conséquente des travaux de thèse a été consacrée au développement expérimental. Ce chapitre décrit notamment le dispositif expérimental dédié aux mesures de photoluminescence stationnaires et résolues en temps avec différentes polarisations de l'excitatrice. Ce chapitre peut être utile à tout futur utilisateur du dispositif.

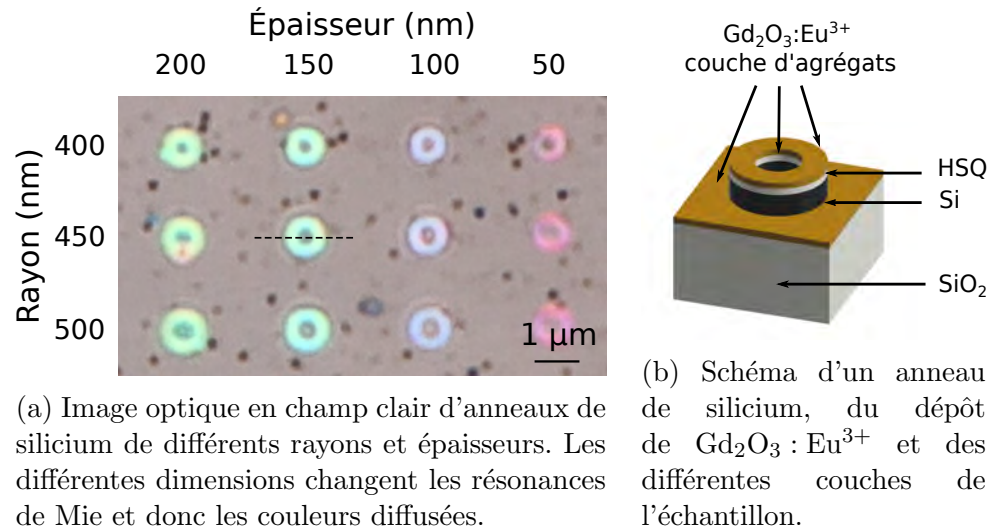
3.1 Les échantillons

Présentation des échantillons et fabrication

Le substrat d'origine des échantillons est une couche de silicium monocristallin de 90 nm d'épaisseur transféré par procédé *SmartCut* [Rou+17] sur un substrat de silice fondue (*SOQ*, voir chapitre 1). Une couche d'hydrogénosilsesquioxanes (HSQ) est ensuite déposée avec une tournette pour obtenir une surface homogène de 50 nm d'épaisseur.

La lithographie électronique permet de durcir le HSQ à la forme souhaitée, c'est à dire à la forme des structures, avant de passer l'échantillon sous gravure plasma. On obtient alors les structures souhaitées et le reste de HSQ est ensuite retiré par bain chimique.

Cependant, une couche de HSQ demeure sur les structures (voir figure 3.1b) avec une épaisseur d'environ 20 nm. Les propriétés optiques du HSQ



^a. Microscope à Force Atomique.

FIGURE 3.1

sont similaires à celles de la silice. À l'heure actuelle, il n'est pas possible de retirer totalement l'épaisseur résiduelle de HSQ sans faire disparaître les nano-structures de très petites dimensions.

Les structures présentées ici sont des nano-anneaux (voir fig. 3.1a). La figure 3.1b illustre les différentes couches présentes sur l'échantillon dont celle de $Gd_2O_3 : Eu^{3+}$ qui a été déposée par « LECBD »¹[Per+10 ; Wie+19]. Le dépôt est homogène et d'épaisseur 20 nm comme le montre le profil AFM

1. Acronyme anglais de « Low Energy Cluster Beam Deposition ».

de la figure 3.1c.

La géométrie en anneaux a été choisie car cette forme est similaire à celle des faisceaux vectoriels cylindriques et elle offre la possibilité d'introduire les émetteurs à l'intérieur de la structure.

Les structures sont caractérisées par leur rayon R et leur épaisseur W ². Leur hauteur est celle de la couche de silicium, à savoir 90 nm.

Contexte et collaboration

Les travaux de la thèse ont été conduits dans le cadre d'un projet financé par l'Agence Nationale de la Recherche (*HiLight ANR-19-CE24-0019*) qui rassemble cinq laboratoires dans un consortium où chacun d'entre eux participe en apportant des compétences et des savoir-faire différents.

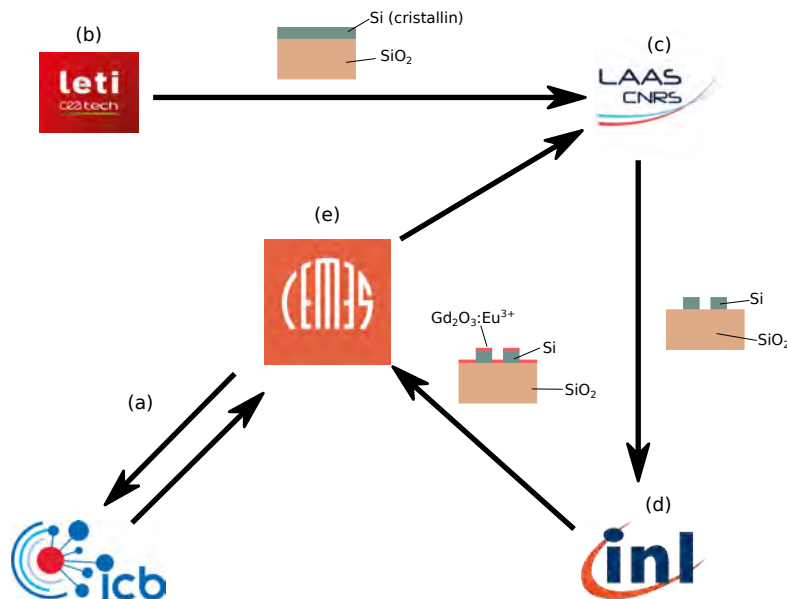


FIGURE 3.2 – Schéma représentatif des interactions entre les laboratoires du consortium.

La figure 3.2 représente les interactions entre les laboratoires pour la fabrication des échantillons ainsi que leur analyse. En premier lieu, l'ICB³ interagit avec le CEMES pour définir, à partir de simulations numériques,

2. Pour « width » qui signifie « largeur » en anglais.

3. Institut Carnot de Bourgogne, situé dans la ville de Dijon.

les formes et tailles de structures nécessaires pour atteindre les objectifs (a). En parallèle, le CEA-LETI⁴ transfère des couches de silicium cristallin de 90 nm d'épaisseur sur un substrat de SiO₂ avant de faire parvenir ces *wafers* au LAAS⁵ (b,c). C'est au LAAS que sont gravés les échantillons qui sont envoyés à l'INL⁶ (d) où est déposée une couche mince de Gd₂O₃ : Eu³⁺. Les études optiques sont alors effectuées au CEMES (e).

3.2 Description du dispositif expérimental

Le schéma du banc expérimental vu de dessus est représenté sur la figure 3.3a. Le banc est composé de quatre parties principales, une partie injection, le bâti du microscope et deux branches de détection.

La partie injection se compose d'abord d'un coupleur de fibre permettant d'injecter un laser venant d'une salle voisine ou un laser super-continuum, et un laser solide à 532 nm présent sur le banc de manière permanente. Un ensemble composé d'une lame demi-onde sur platine rotative suivie d'un analyseur linéaire permet de faire varier la puissance laser tout en conservant une polarisation linéaire. Une lame séparatrice permettant de réfléchir la moitié de l'intensité lumineuse vers un puissance-mètre pour connaître en temps réel la puissance envoyée sur l'échantillon est placée sur le chemin optique. Un télescope en bout de ce système permet d'adapter la taille du faisceau à la lentille d'entrée de l'objectif pour exploiter au mieux son ouverture numérique et ajuster la collimation (voir partie 3.4). Il est suivi d'un filtre passe-bas à 550 nm pour filtrer les raies basse fréquence du laser au besoin. Enfin une lame demi-onde sur platine rotative contrôlée par ordinateur associée à une *q-plate* permettent de générer les faisceaux vectoriels cylindriques de polarisation souhaitée (azimutale ou radiale) est placée en entrée du bâti du microscope. Le fonctionnement de cette *q-plate* est expliquée dans la sous-section 3.3.1.

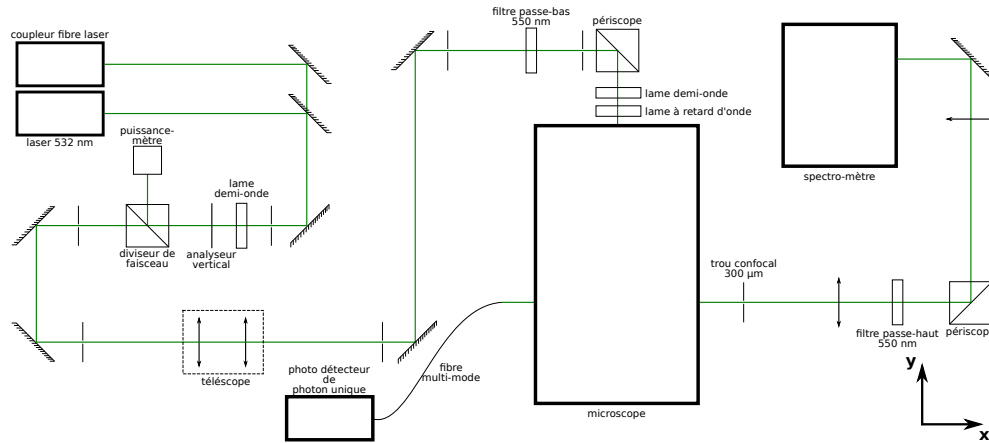
Le microscope est un bâti inversé Nikon *Ti2* composé de deux tourelles portes cubes superposées avec dans la première un filtre dichroïque pour réfléchir le faisceau laser dans l'objectif à l'aller et transmettre le signal de photoluminescence vers les détecteurs au retour et une lame séparatrice dans

4. Laboratoire d'Électronique des Technologies de l'Information du Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives, situé à Grenoble

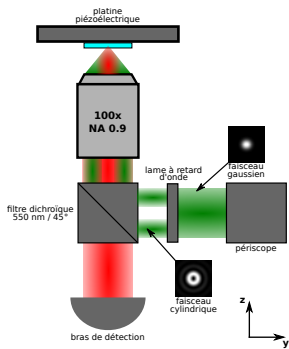
5. Laboratoire d'Analyse et d'Architecture des Systèmes à Toulouse.

6. Institut des Nanotechnologies de Lyon, dans la ville de Lyon.

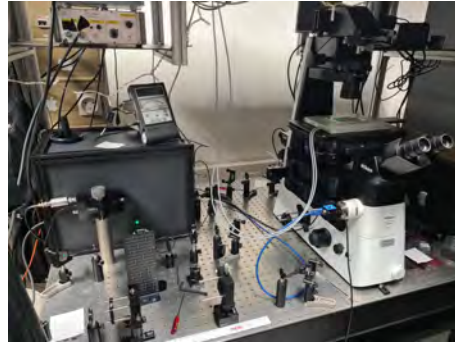
3.2. Description du dispositif expérimental



(a) Schéma de montage du banc expérimental vu de dessus.



(b) Schéma de montage du microscope vu de côté.



(c) Photographie du banc expérimental.

FIGURE 3.3

le second (non représenté sur le schéma) pour réfléchir la lumière blanche sur l'échantillon. L'objectif utilisé est un Olympus 100x d'ouverture numérique 0,9. La plus grande ouverture numérique est souhaitée pour séparer au mieux les composantes électrique et magnétique des faisceaux cylindriques de polarisation [Kas+15]. L'échantillon est alors placé à l'envers sur une platine piézoélectrique (voir figure 3.3b) qui permet des déplacements nanométriques dans le plan (xOy) avec un débattement de $100 \mu\text{m}$ par $100 \mu\text{m}$.

Deux branches de détections sont liées au bâti. Une partant vers la gauche, la sortie est alors fibrée jusqu'à un détecteur de photon unique pour faire de la mesure de durée de vie ou du comptage de photon. Le bras de droite est

dédié à la mesure de spectres avec un spectromètre commercial Andor muni d'un réseau 300 traits/mm et d'une caméra CCD du même fabricant. La photographie 3.3c offre une vue globale du banc de mesure.

3.3 Génération et injection des faisceaux vectoriels cylindriques

Pour les raisons citées aux chapitres 1 et 2, les faisceaux de polarisations azimutale et radiale sont au cœur du projet de thèse. Compte tenu de l'architecture du dispositif, il est nécessaire de s'assurer de la préservation de la polarisation le long du trajet optique, et en particulier sur l'échantillon après réflexion sur le filtre dichroïque et focalisation dans l'objectif.

3.3.1 Génération d'un faisceau vectoriel cylindrique

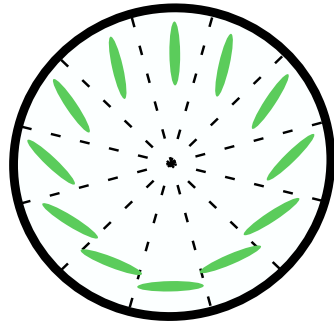
Le moyen de générer un faisceau vectoriel cylindrique est une lame à retard d'onde, appelée *q-plate*. Cet élément est constitué d'une couche mince de cristaux liquides biréfringents qui permettent d'induire un déphasage et de modifier la polarisation d'un faisceau la traversant de manière spatialement hétérogène.

Ces cristaux liquides sont orientés dans l'élément comme dans la figure 3.4a et agissent chacun comme une lame demi-onde. Ainsi, lorsque la polarisation de l'onde incidente est linéaire verticale, la polarisation en sortie sera radiale (fig. 3.4b), et si la polarisation est linéaire horizontale en entrée, elle sera azimutale en sortie (fig. 3.4c).

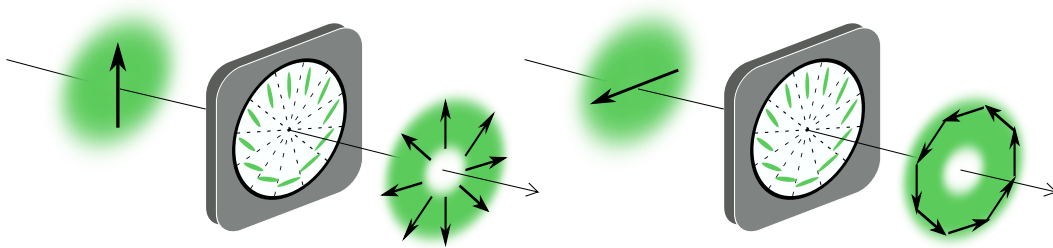
La nature et les caractéristiques particulières de ces faisceaux vectoriels cylindriques sont décrites dans la section 2.2 du chapitre 2.

La polarisation du laser incident étant linéaire verticale, l'ajout d'une lame demi-onde dont la rotation est contrôlée par l'ordinateur permet alors de passer rapidement et très facilement de la polarisation radiale à azimutale.

La *q-plate* employée pour les mesures est la *WPV10L-532* du fabricant Thorlabs, dont le fonctionnement est optimisé pour la longueur d'onde de 532 nm.



(a) Schéma de la lame à retard d'onde avec les arrangements des cristaux liquides biréfringents.



(b) Schéma de la génération d'un faisceau de polarisation radiale.

(c) Schéma de la génération d'un faisceau de polarisation azimutale.

FIGURE 3.4

3.3.2 Coefficients de Stokes pour analyser un faisceau vectoriel cylindrique

Les coefficients de Stokes traduisent la nature de la polarisation, son orientation et son ellipticité. Lorsque la polarisation est spatialement homogène dans le plan transverse, ces coefficients peuvent être mesurés à partir de l'intensité totale. Dans le cas des faisceaux vectoriels cylindriques, la distribution spatiale de la polarisation étant hétérogène, les coefficients de Stokes doivent être mesurés en chaque point du plan transverse.

Principe de la mesure

Pour calculer les coefficients de Stokes, il faut avoir accès à quatre images du faisceau acquises à l'aide d'analyseurs placés à des angles particuliers par rapport à une origine [Sch+07] (voir figure 3.5).

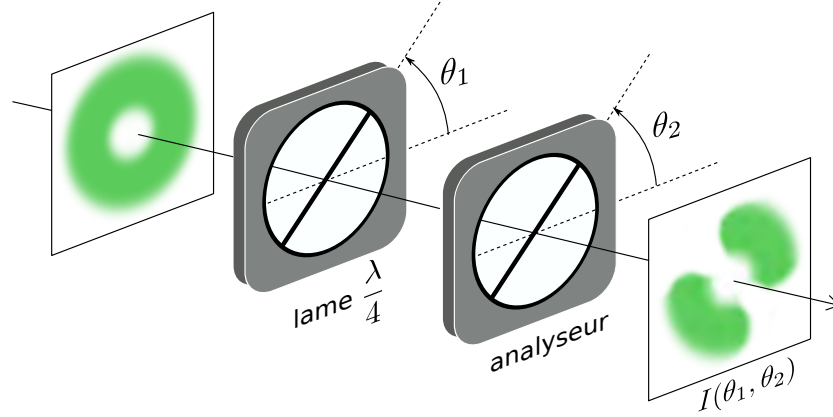


FIGURE 3.5 – Principe de la mesure des intensités du faisceau nécessaires au calcul des paramètres de Stokes. La lame quart d'onde n'est insérée que pour une seule mesure (celle de $I(45, 90)$).

À partir de ces images, il est possible de calculer les quatre coefficients de Stokes :

$$S_0 = I(-, 0) + I(-, 90) \quad (3.1)$$

$$S_1 = I(-, 0) - I(-, 90) \quad (3.2)$$

$$S_2 = 2I(-, 45) - S_0 \quad (3.3)$$

$$S_3 = S_0 - 2I(45, 90) \quad (3.4)$$

Dans ces équations, $I(\theta_1, \theta_2)$ est une matrice pour laquelle chaque élément correspond à un pixel de l'image capturée par la caméra. On calcule à partir de ces coefficients les paramètres Φ et χ suivants :

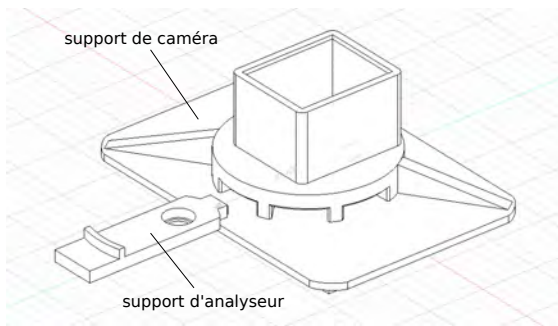
$$\Phi = \frac{1}{2} \arctan \left(\frac{S_2}{S_1} \right) \quad (3.5)$$

$$\chi = \frac{1}{2} \arcsin \left(\frac{S_3}{S_0} \right) \quad (3.6)$$

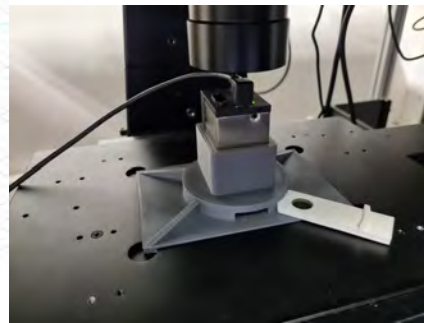
Φ et χ sont alors des matrices dont chaque élément donne respectivement l'angle d'orientation et l'ellipticité de la polarisation. Ils sont les demi-coordonnées sphériques qui, dans la sphère de Poincaré, renvoient à la nature de la polarisation.

Analyse de la polarisation

Pour analyser la polarisation du faisceau, il faut prendre une image de ce dernier à l'endroit où se tient normalement l'échantillon tout en plaçant les analyseurs nécessaires à l'analyse de Stokes. Nous avons fabriqué un dispositif pour placer la caméra et les analyseurs (voir figure 3.6) en lieu et place de l'objectif.



(a) Image CAO ^a du support de caméra et du support d'analyseur qui peut s'insérer dans trois emplacements à 0, 45 et 90°.



(b) Photographie du support 3D imprimé et placé dans son emplacement. En blanc, un support d'analyseur.

^a. Concept Assisté par Ordinateur.

FIGURE 3.6

La figure 3.6a montre un modèle 3D du module imprimé, il est accompagné de deux supports pour analyseur. Ces supports peuvent s'insérer dans le support à des angles de 0, 45 et 90° par rapport à un axe défini arbitrairement. Dans ces supports sont collés pour l'un, un analyseur linéaire, et pour l'autre, un analyseur circulaire large bande ; ce dernier sert uniquement à la mesure de $I(45, 90)$. La figure 3.6b montre une photographie de ce système en place sur le microscope avec la caméra.

Une fois installé, ce dispositif permet d'obtenir des images telles que sur la figure 3.7. Ces images sont finalement la répartition en intensité du fais-

ceau (ici de polarisation azimutale) après différentes analyses dans le plan d'imagerie de la caméra sans objectif.

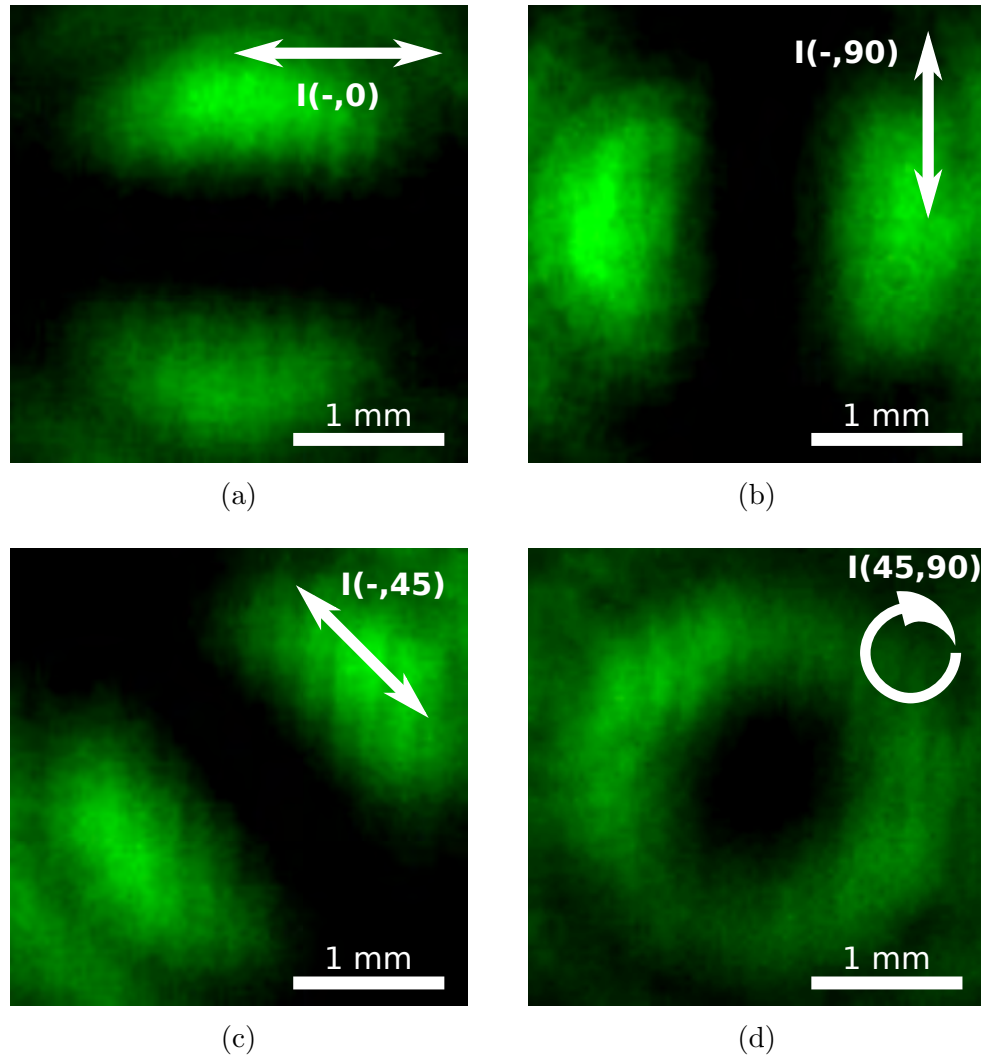


FIGURE 3.7 – Images du faisceau azimutal pour différentes analyses de polarisation.

Ainsi, lorsque l'axe de l'analyseur est horizontal, seule la composante horizontale du champ est transmise ; pour le cas de la polarisation azimutale, cela se traduit par deux lobes visibles en haut et en bas de l'image (fig. 3.7a). Si l'analyseur est tourné de 90° , c'est à dire que son axe est vertical, (fig.

3.7b), les deux lobes se trouvent donc à droite et à gauche comme attendu. Sur la figure 3.7c, l'image est également en adéquation avec ce qui est attendu. Enfin, une signature homogène derrière l'analyseur circulaire montre qu'il n'y a pas d'ellipticité (fig. 3.7d).

Les calculs des paramètres de Stokes puis des paramètres Φ et χ permettent d'approfondir cette analyse de la polarisation du faisceau. La figure 3.8 montre les résultats des calculs des matrices Φ et χ pour les polarisations azimutale et radiale.

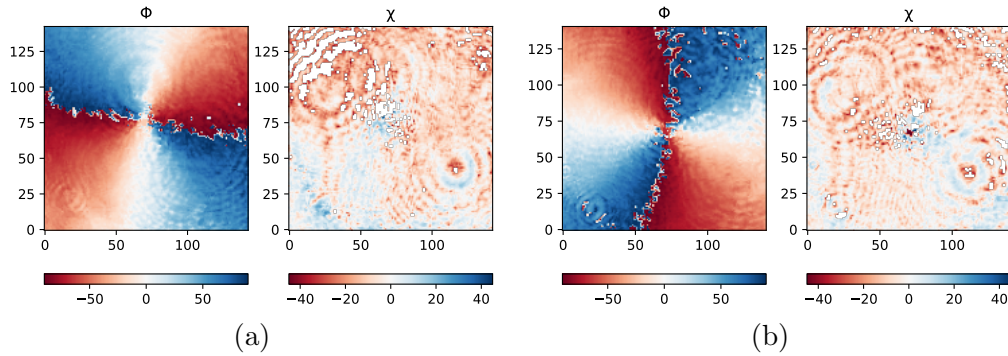


FIGURE 3.8 – Carte des valeurs de $\Phi(x, y)$ et $\chi(x, y)$, échelle de couleur pour les valeurs d'angle en ($^\circ$). (a) pour la polarisation azimutale. (b) pour la polarisation radiale.

Nous constatons d'abord que, dans les deux cas, χ est quasi-nul en tout point de la carte indiquant une faible ellipticité. Φ en revanche évolue de -90 à 90° comme le montre les figures 3.8a et b. La polarisation est donc toujours linéaire mais d'orientation différente en chaque point de la carte.

Ainsi, lorsque $\Phi = 0^\circ$, la polarisation est linéaire et horizontale et lorsque $\Phi = 90^\circ$, la polarisation est linéaire et verticale. L'orientation de la polarisation varie en restant linéaire montrant ainsi que la polarisation est bien azimutale dans un cas et radiale dans l'autre.

Cette méthode permet donc de définir efficacement si la polarisation est de bonne qualité et est utilisée avant chaque campagne de mesures pour s'en assurer.

3.4 Mesures spectroscopiques

Le banc expérimental est composé de deux branches de détection. Cette partie traite de la branche de détection dédiée à la mesure de spectres.

Facteur de remplissage

Le principe de l'expérience est d'exciter une zone de l'échantillon avec un faisceau laser. Le premier point à améliorer, si l'on souhaite une bonne résolution spatiale, est la taille du faisceau sous l'objectif. Plus le faisceau est focalisé, plus la zone d'excitation est petite au bénéfice de la résolution spatiale. C'est pourquoi nous utilisons un objectif d'ouverture numérique 0,9 à l'air⁷.

Le second point à améliorer est le facteur de remplissage f_0 (*filling factor*). Il est défini comme :

$$f_0 = \frac{\omega_0}{f \cdot \sin\theta_{max}} \quad (3.7)$$

Où ω_0 est la demi-largeur à $1/e^2$ du faisceau gaussien incident, f est la distance focale et θ_{max} est l'angle définissant l'ouverture numérique du dispositif. Le schéma de la figure 3.9 illustre cette équation.

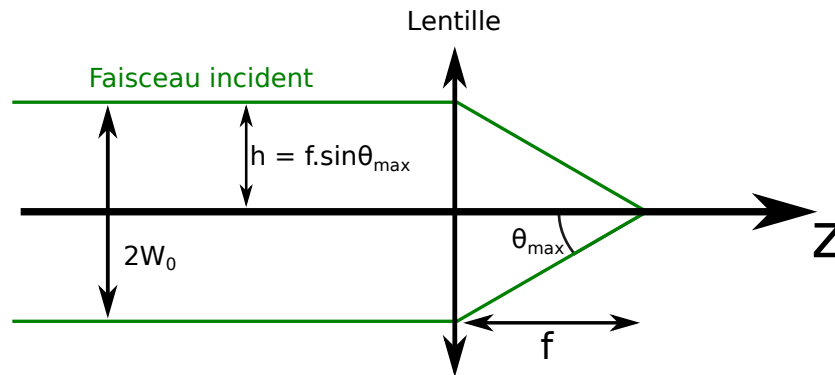


FIGURE 3.9 – Schéma de principe du facteur de remplissage.

Plus le facteur de remplissage est grand, plus la lumière est focalisée par l'objectif. La figure 3.10 montre les champs électrique et magnétique d'un

7. Travailler dans l'eau ou l'huile aurait permis d'augmenter l'ouverture numérique, mais risquerait de dégrader l'échantillon.

faisceau de polarisation radiale calculés au plan focal par méthode *FDTD*. Lorsque le facteur de remplissage prend une valeur de 1, les champs sont bien séparés spatialement et le diamètre du faisceau focalisé est faible. En revanche, lorsque celui prend des valeurs inférieures, comme 0,56, les champs électrique et magnétique ne sont plus spatialement séparés et la taille du faisceau focalisé est beaucoup plus grande.

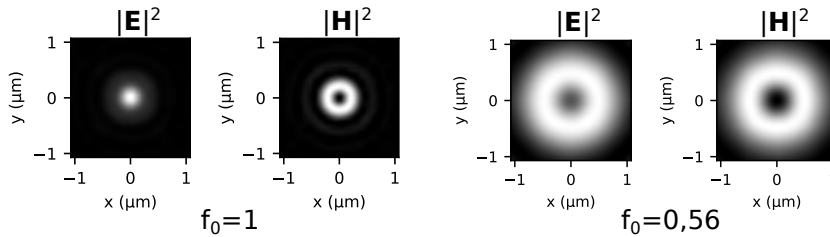


FIGURE 3.10 – Intensité des champs électrique et magnétique d’un faisceau radial focalisé pour deux facteurs de remplissage donnés.

Dans notre cas, la lentille de l’objectif a un diamètre de 2,5 mm et le faisceau laser a un diamètre de 2 mm. Pour avoir un facteur de remplissage le plus proche possible de 1 tout en conservant un maximum de transmission, nous avons intégré un élargisseur de faisceau avec deux lentilles plano-convexe de focales 50 et 100 mm respectivement permettant un grossissement de la taille du faisceau d’un facteur 2 et un ajustement de la collimation de ce dernier.

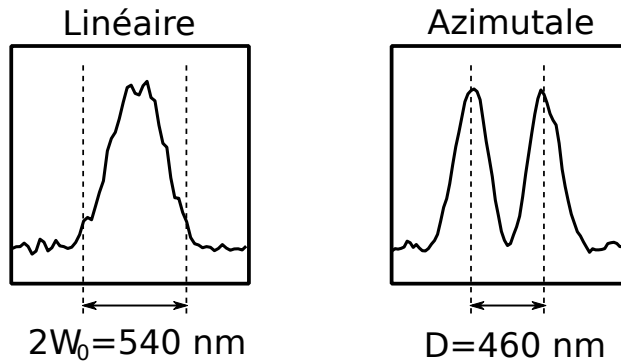


FIGURE 3.11 – Profils des faisceaux sous objectif.

De cette sorte, les faisceaux obtenus sont de dimensions très petites comme le montre la figure 3.11.

Résolution spatiale et trou confocal

La présence ou non du trou confocal en sortie de microscope et sa taille ont une influence certaine sur la qualité de la mesure. Un trou confocal est en fait un sténopé placé dans le plan conjugué du plan objet, c'est-à-dire là où sont placés les émetteurs. Il permet d'améliorer la résolution spatiale et diminuer la profondeur de champ, ce qui a pour conséquence d'éliminer la lumière parasite.

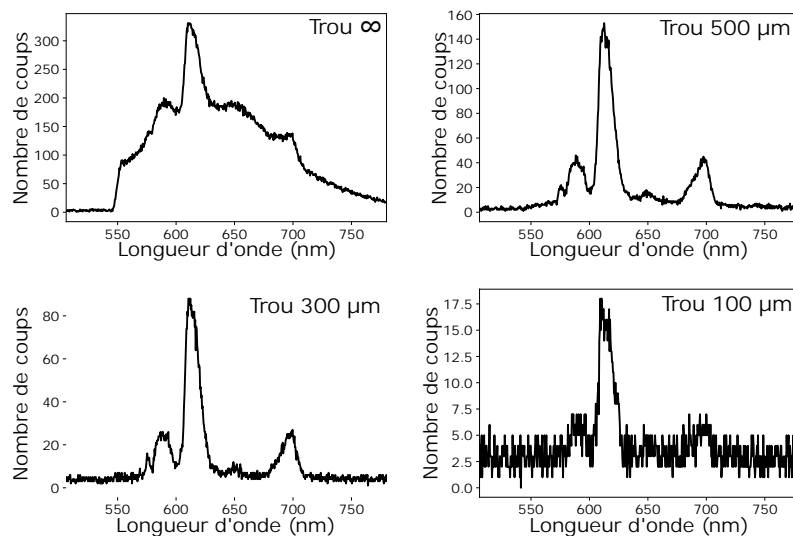


FIGURE 3.12 – Spectres de la couche de $Gd_2O_3 : Eu^{3+}$.

Sur la figure 3.12, nous observons des spectres de photoluminescence de la couche mince de $Gd_2O_3 : Eu^{3+}$ mesurés avec le banc expérimental au même endroit de l'échantillon à puissance laser constante, le seul paramètre qui varie est le diamètre du trou confocal (100, 300, 500 et $\infty \mu m$). Avec un diamètre ∞ , le signal est très dégradé par un fond important, avec le trou de 500 μm , ce fond est filtré (élimination de la lumière parasite). Cependant, si on réduit le diamètre du trou, on dégrade le signal.

Néanmoins, lorsque le diamètre du trou diminue, la résolution spatiale est améliorée. En effet, si on s'intéresse à la figure 3.13 qui montre des cartographies de l'intensité de la diffusion Raman à deux phonons optiques du silicium d'un anneau de rayon 400 nm et d'épaisseur 50 nm éclairé avec un faisceau gaussien de polarisation verticale et de puissance constante avec un

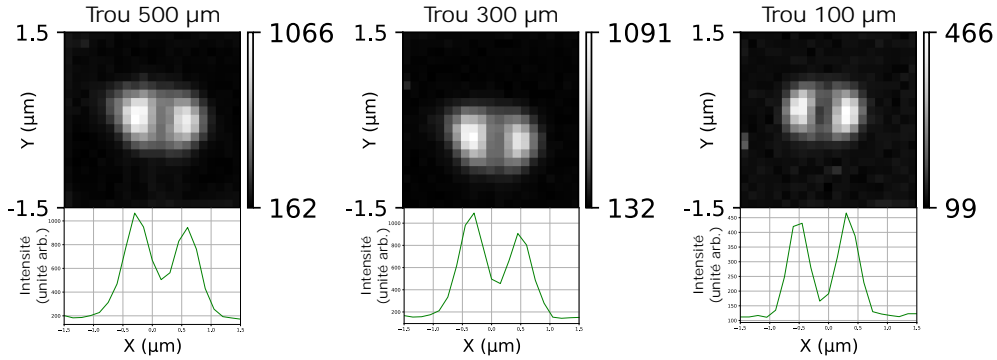


FIGURE 3.13 – Scan du Raman du silicium et profils pour trois trous confocaux.

pas du balayage de 150 nm ; on observe que plus le trou confocal est petit plus la résolution spatiale est bonne, ce qui est confirmé par les profils d'intensité.

Il faut donc trouver un compromis entre résolution spatiale et rapport signal sur bruit. Le compromis choisi est l'utilisation du trou confocal de 300 μm de diamètre pour les mesures.

3.5 Mesure de durée de vie

Mesure avec une *SPAD* et une carte d'acquisition *TCSPC*

La méthode utilisée pour la mesure de durée de vie est la méthode *TCSPC*⁸. Elle consiste en synchroniser l'excitation laser et le début du comptage de photon.

Pour chaque impulsion laser, un photon est mesuré et rangé dans un histogramme. La mesure suit le schéma classique suivant : le laser émet une impulsion à $t = t_0$, la carte d'acquisition est synchronisée et déclenche la mesure du temps. L'échantillon est excité par le laser et émet ensuite des photons pendant toute la période de sa durée de vie. La *SPAD*⁹, c'est à dire la diode, détecte un photon issu de la photoluminescence à un temps $t = t_0 + dt$ et envoie cette information à la carte d'acquisition. Au fur et à mesure des impulsions laser l'histogramme du nombre de photons enregistrés en fonction du délai dt se construit.

8. Acronyme anglais de « Time Correlated Single Photon Counting ».

9. Acronyme anglais de « Single Photon Avalanche Diode ».

Le banc expérimental est doté d'une carte d'acquisition TH260 de la marque PicoQuant conçue pour une résolution de 25 ps prévue pour mesurer des dynamiques de désexcitation très rapides (typiquement inférieures à la microseconde). Dans les conditions normales d'utilisation, il est important de n'enregistrer qu'un seul photon par cycle pour éviter que la statistique de comptage ne soit perturbée par des limitations techniques telles que le temps mort (temps pendant lequel le dispositif est aveugle après un enregistrement). Dans le cas de l'euporium le temps de vie est particulièrement long, de l'ordre de la milliseconde [HE08]. Ceci nous autorise à enregistrer plusieurs photons par cycle sans fausser la statistique d'émission de photon mais entraîne d'autres problèmes techniques liés au taux de répétitions des impulsions laser.

Modulation du faisceau

Dans un cas idéal, il faudrait un laser pouvant produire des impulsions infiniment courtes avec un taux de répétition de 1 kHz et qui pourrait déposer une grande quantité d'énergie par impulsion. Ainsi, comme le montre le schéma de la figure 3.14a, le signal mesuré serait une exponentielle décroissante de laquelle il serait possible d'extraire directement le temps de vie de l'euporium.

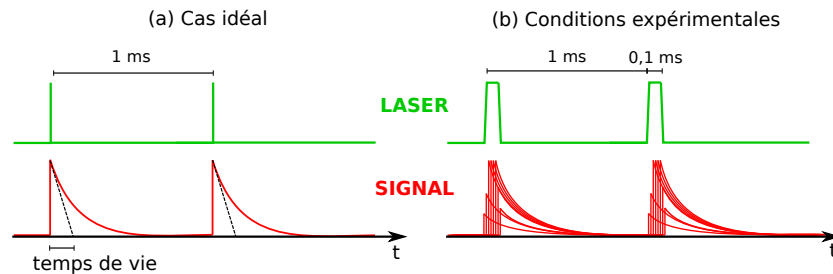
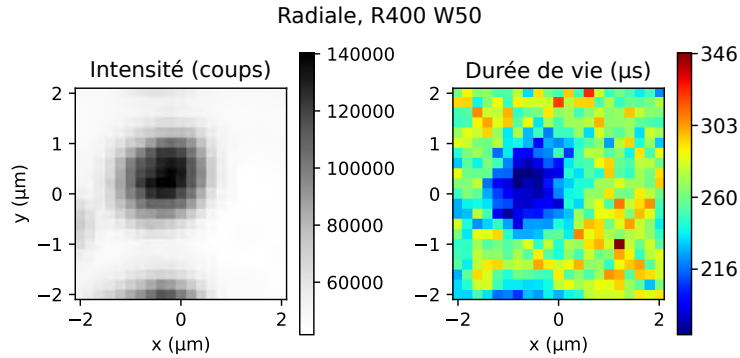
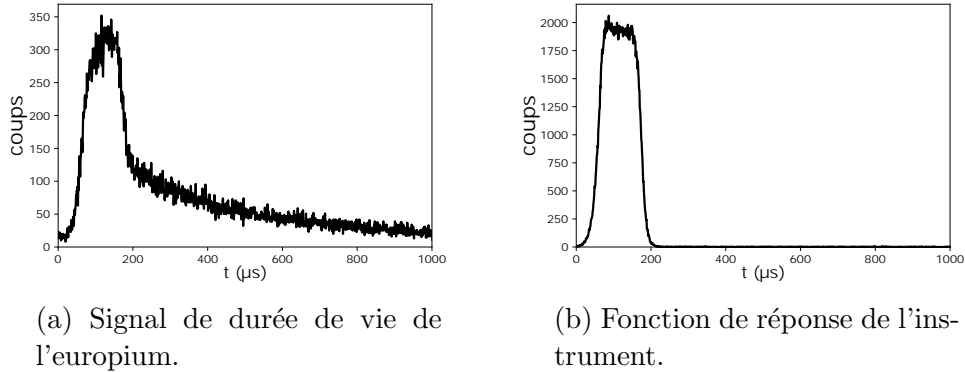


FIGURE 3.14

N'ayant pas ce matériel, nous nous sommes tourné vers une solution alternative : un laser continu haché avec une roue 1/10 avec un cycle à 1 kHz. Ainsi, l'échantillon est exposé au laser 0,1 ms par cycle. L'inconvénient est que le temps d'exposition par cycle est non négligeable et donc la courbe mesurée est convoluée par le signal laser, voir figure 3.14b. La réponse n'est alors pas une simple exponentielle comme nous pouvons le constater sur le signal de mesure de durée de vie de l'euporium de la figure 3.15a.

Il faut donc mesurer la fonction réponse de l'instrument, c'est à dire la réponse du laser en l'absence d'émetteurs, dont un exemple est donné dans la figure 3.15b, et développer un protocole de déconvolution à appliquer en chaque point de la cartographie.



(c) À gauche, carte de l'intensité sous la courbe de durée de vie. À droite, carte de la durée de vie.

FIGURE 3.15

L'acquisition de la fonction réponse est très simple. Cependant, la déconvolution de signaux bruités est particulièrement compliquée est représentée un domaine de recherche à part entière. Le choix s'est donc porté sur l'utilisation de l'extension FLIMJ [Gao+20] implémentée dans le logiciel libre FIJI [Sch+12] qui permet de déconvoluer chaque signaux temporels par la fonction réponse de l'instrument à l'aide de la méthode Levenberg–Marquardt [Lev44].

La figure 3.15c est un exemple de cartographie de durée de vie effectuée sur le banc de mesure et après déconvolution. La cartographie a été faite avec une excitation de polarisation radiale sur un anneau de 400 nm de diamètre et 50 nm d'épaisseur. La carte d'intensité (aire sous la courbe de durée de vie) permet de situer la structure. Et nous observons sur la carte de durée de vie que l'antenne a un effet sur durée de vie de l'euporium, cette dernière diminue en présence de la nano-structure. Ceci est directement lié à la densité locale d'états photoniques du nano-anneau de silicium. La mesure de durée de vie permet d'obtenir des informations sur la *LDOS* des antennes. Les travaux de mesure de durée de vie sont en cours au moment de la rédaction de ce manuscrit.

3.6 Cartographie et traitement des données

La platine piezo-électrique sur laquelle est placé l'échantillon permet des déplacements selon deux axes (x et y) permettant d'acquérir des cartographies. L'intérêt est donc de venir pomper l'euporium en divers endroits, autour et sur la structure, et de collecter point par point la lumière ré-émise à plus faible énergie (photoluminescence et diffusion inélastique). L'objectif étant d'analyser l'influence de la nano-antenne sur l'intensité et le profil spectral de la photoluminescence ; les données enregistrées sont alors des images hyper-spectrales, c'est à dire des matrices en trois dimensions : deux dimensions pour les positions (x,y) de la carte et la troisième dimension contenant le spectre.

Après traitement de ces cartographies hyper-spectrales, nous obtenons des informations sur :

- La photoluminescence.
- La signature de la diffusion Raman à deux phonons optiques du silicium.
- Les taux d'émissions des transitions de l'euporium qui nous donneront des informations sur les effets de *LDOS*.

Toutes ces informations sont extraites de la même mesure, c'est à dire de la même cartographie hyper-spectrale.

Cartes d'exaltation et de déplétion de la photoluminescence

Les données brutes sont donc des cartes hyper-spectrales qui sont traitées selon l'organigramme de la figure 3.16.

3.6. Cartographie et traitement des données

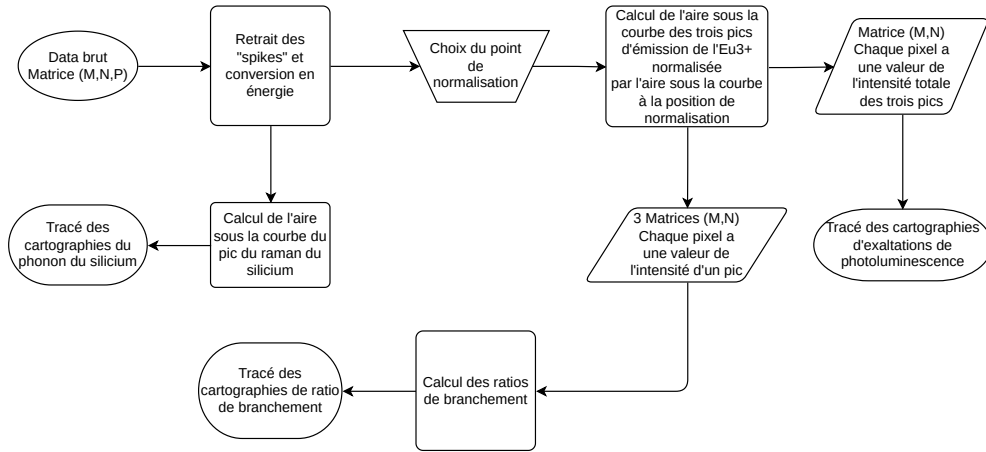


FIGURE 3.16 – Organigramme du traitement des données hyperspectrales.

Plusieurs fonctions sont intégrées au code de traitement, une première lit les $M \times N$ spectres de la carte et retire les *spikes*¹⁰. Le dépôt d'euporium étant homogène, l'intensité de photoluminescence hors des structures est constante, l'utilisateur choisit donc un point dans cette couche comme valeur de référence ou de normalisation du signal de l'euporium.

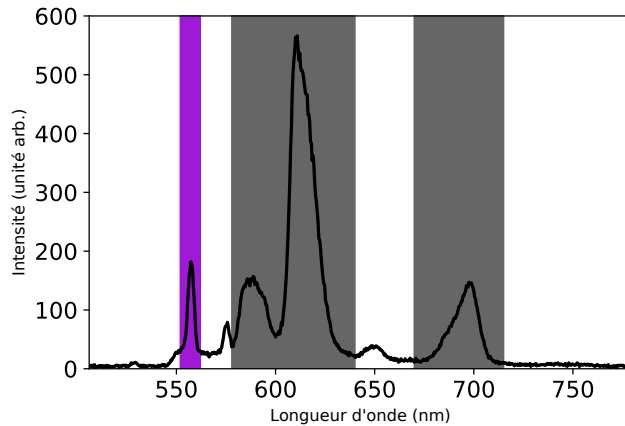


FIGURE 3.17 – Spectre de la diffusion Raman à deux phonons optiques du silicium (en violet) et de la photoluminescence de la couche de $Gd_2O_3 : Eu^{3+}$ (en gris).

10. Artefacts dus à la détection de rayonnements cosmiques

Une fois fait, une autre fonction calcule l'aire sous la courbe des trois pics d'émission de l'euporium (zone grisée sur le spectre de la figure 3.17) en chaque point de la carte et divise ces valeurs par celles du point de référence, ainsi, l'exaltation ou la déplétion de la photoluminescence prendra des valeurs supérieures à un (exaltation) ou inférieures à un (déplétion).

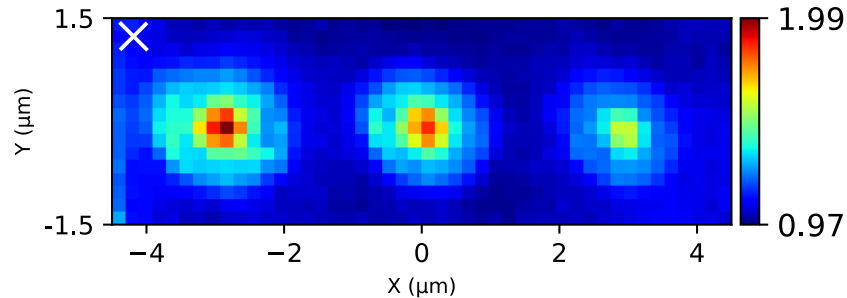


FIGURE 3.18 – Carte de photoluminescence d'anneaux de silicium de rayons 500, 450 et 400 nm et d'épaisseur 50 nm excités par un faisceau de polarisation azimutale. Le pixel de référence pour la normalisation est marqué d'une croix.

In fine, les cartes ressemblent à celle présentée dans la figure 3.18 où chaque pixel prend la valeur de l'intensité de la photoluminescence. Les résultats expérimentaux sont discutés dans le chapitre 4.

Cartes de la diffusion Raman du silicium

La diffusion Raman est une diffusion inélastique de la lumière par les vibrations du réseau cristallin qui a pour conséquence de changer légèrement la longueur d'onde de la lumière incidente. Les structures sont composées de silicium cristallin et le substrat est de la silice amorphe (SiO_2), ces deux matériaux ont un effet Raman mais nous n'observons que les pics fins du spectre Raman des structures cristallines. La diffusion Raman est mesurable spectralement, le spectre à un phonon optique du silicium cristallin forme un pic étroit positionné à 520 cm^{-1} de l'excitatrice. Lorsque le faisceau de pompe est à 532 nm, cela implique que le premier pic Raman soit à 545 nm. Ce pic est coupé par le filtre passe-haut du banc expérimental. Cependant le deuxième ordre (diffusion Raman à deux phonons optiques) se situe, lui, à 950 cm^{-1} de l'excitatrice, soit à 560 nm (voir figure 3.17). C'est ce pic que nous utilisons pour calculer les cartes de la diffusion Raman du silicium.

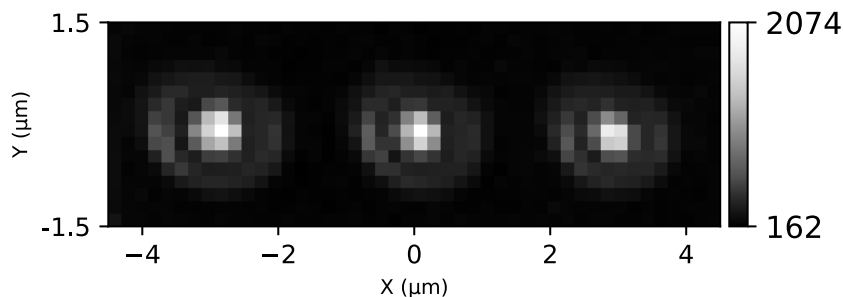


FIGURE 3.19 – Carte de la diffusion Raman d’anneaux de silicium de rayons 500, 450 et 400 nm et d’épaisseur 50 nm excités par un faisceau de polarisation azimutale.

La figure 3.19 montre un exemple de carte obtenue après traitement de ce pic. Chaque pixel est alors l’intensité de diffusion Raman à deux phonons optique du silicium. Elle est calculée avec le même code que pour la photoluminescence mais en intégrant cette fois le pic du spectre Raman à 560 nm (zone violette sur le spectre de la figure 3.17) et n’est pas normalisée car le signal est nul loin des structures de silicium.

Ce type de carte permet d’avoir une information sur la qualité de la mesure et la position des structures sur les cartes.

Cartes des taux d’émission radiative

Enfin, pour des raisons qui sont décrites dans le chapitre suivant, il est intéressant de prêter attention aux taux d’émission radiative, qui seront également définis dans le chapitre 4. Ces derniers sont calculés selon la formule suivante :

$$\beta_i(M, N) = \frac{I_i(M, N)}{I_{DM}(M, N) + I_{DE1}(M, N) + I_{DE2}(M, N)}, i = \{DM, DE1, DE2\} \quad (3.8)$$

Où I_i est l’intensité de photoluminescence normalisée en chaque point M et N, calculée par le code précédemment expliqué. Et β_i est le taux d’émission de la transition $i = \{DM, DE1, DE2\}$.

La figure 3.20 montre le résultat de ce traitement pour des anneaux de silicium de rayons 500, 450 et 400 nm et d’épaisseur 50 nm excités par un faisceau de polarisation azimutale. Nous obtenons ainsi trois cartes, une pour

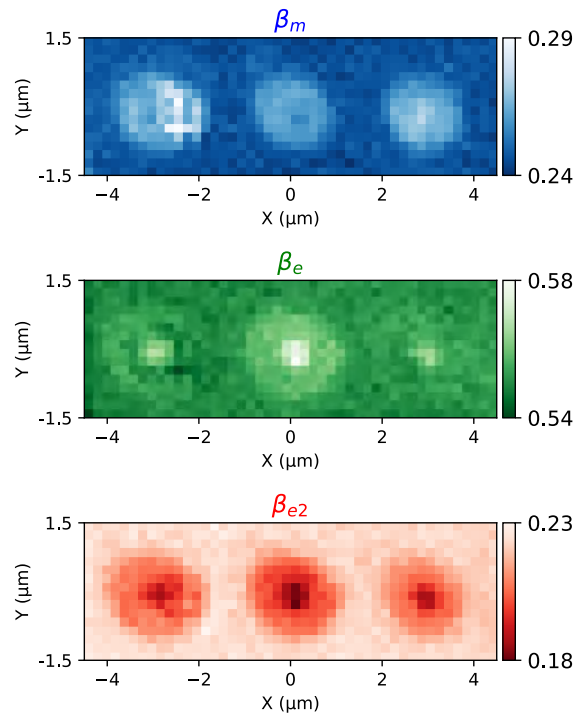


FIGURE 3.20 – Cartes des taux d’émission radiative d’anneaux de silicium de rayons 500, 450 et 400 nm et d’épaisseur 50 nm excités par un faisceau de polarisation azimutale..

chaque transition à l’émission de l’euprémium sur lesquelles les zones blanches pointent les positions où la transition est privilégiée par rapport aux autres.

Chapitre 4

Contrôle de la photoluminescence d'émetteurs placés dans le champ proche de nano-anneaux de silicium

Ce chapitre présente les résultats obtenus. Nous corrélons ces résultats avec la formule de l'intensité de photoluminescence d'un émetteur placé proche d'une antenne définie comme (voir section 1.2.1 du chapitre 1) :

$$I(\mathbf{r}, \omega_{pompe}, \omega_{em.}) \propto P_{pompe}(\mathbf{r}, \omega_{pompe}) \cdot \phi(\mathbf{r}, \omega_{em.}) \cdot C_{AN}(\mathbf{r}, \omega_{em.}) \quad (4.1)$$

Et nous proposons des modèles numériques pour expliquer les résultats.

4.1 Le spectre Raman du silicium comme révélateur des antennes

Le silicium cristallin n'est présent sur l'échantillon que dans les structures. Ainsi, la diffusion Raman du silicium ne se révèle que lorsque le laser excite la structure (voir chapitre 3). Le spectre Raman du silicium est suffisamment intense pour être détectable et nous permet alors de situer la structure sur la carte (voir figure 3.17).

4.1.1 Cartographie de la diffusion Raman à deux phonons optiques du silicium

La figure 4.1 montre les cartes de diffusion Raman à deux phonons optiques de nano-anneaux de silicium de rayons 500, 450 et 400 nm et d'épaisseurs 50 et 150 nm ; éclairées par les polarisations linéaire, radiale et azimuthale. Nous observons que la taille et l'épaisseur des structures modifient la signature du spectre Raman, il est possible de suivre l'évolution du rayon R et de l'épaisseur W (lecture de gauche à droite). Par ailleurs, la réponse du spectre Raman donne également une indication sur la qualité de la mesure (voir chapitre 3), si la signature devient flou, cela peut indiquer un dysfonctionnement (par exemple une défocalisation) au cours de la mesure.

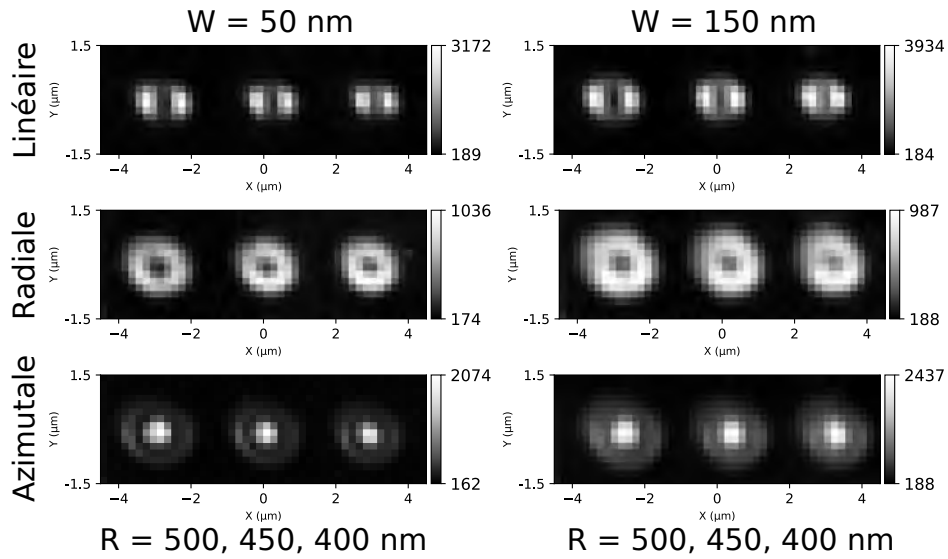


FIGURE 4.1 – Cartographies de l'intensité de la diffusion Raman à deux phonons optiques d'anneaux de silicium.

Enfin, la signature de la diffusion Raman à deux phonons optiques du silicium est différente selon le type d'excitatrice. Pour l'excitation de polarisation linéaire verticale, nous observons deux lobes, une forme de *doughnut* pour la polarisation radiale et un anneau avec un pic au centre pour la polarisation azimuthale.

4.1.2 Interprétation des effets d'excitation

Le signal Raman est directement lié à l'exaltation du champ électrique à l'intérieur de la structure. Or nous avons vu au chapitre 2 que la distribution de l'exaltation du champ électrique dans le volume de la nanostructure dépend du type du faisceau d'excitation (gaussien, azimuthal ou radial). De plus, dans le cas des cartographies, un paramètre supplémentaire est à prendre en compte : la position relative du faisceau exciteur par rapport à la structure. La répartition de l'intensité du champ électrique étant différente pour chacun des trois faisceaux, il est normal de ne pas retrouver la même réponse de la diffusion Raman.

Nous avons comparé ces observations expérimentales avec des simulations *FDTD* en réalisant des cartographies avec les différents faisceaux exciteurs. En chaque point, la structure est excitée par l'onde incidente, et l'intensité du champ est calculée à l'intérieur de la structure. Les résultats sont alors des cartographies de l'intensité du champ électrique à l'intérieur des structures (voir figure 4.2).

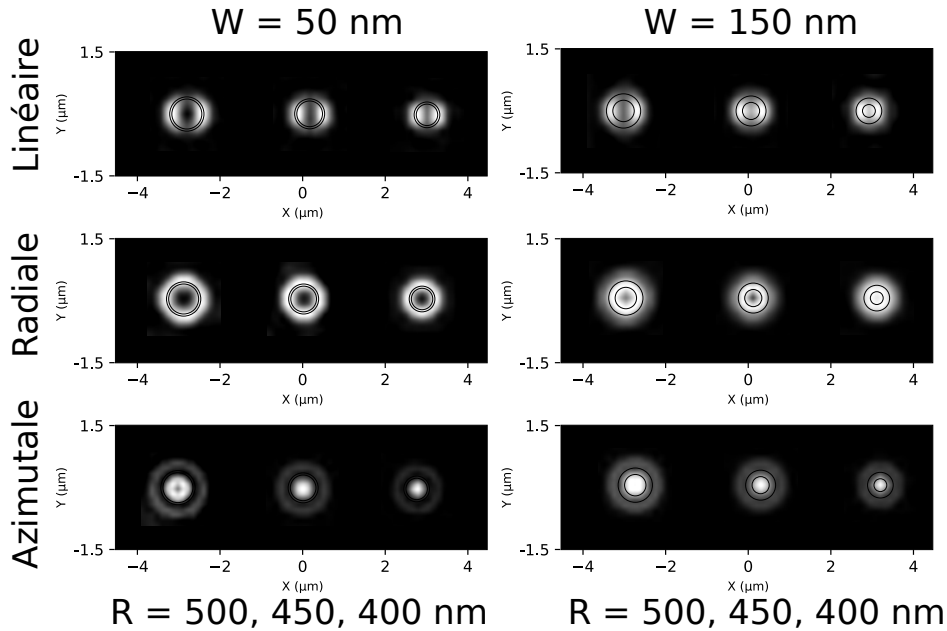


FIGURE 4.2 – Simulation de cartographies de l'intensité du champ électrique à l'intérieur d'anneaux de silicium.

Le très bon accord entre le résultat des simulations numériques et les ob-

servations expérimentales valide l'hypothèse selon laquelle la signature Raman collectée est bien gouvernée par la composante électrique du champ local dans le volume de la structure.

Dans le cas du faisceau gaussien de polarisation linéaire verticale, lorsque la polarisation est tangente à la structure, il y a beaucoup de matière dans le sens de la polarisation, et donc, une forte intensité de la diffusion Raman est mesurée. Si le faisceau est au centre, trop peu de silicium se retrouve éclairé, aucune diffusion n'est alors mesurée. Et enfin, lorsque la polarisation est orthogonale à la structure, l'épaisseur éclairée est très fine et donc le phonon est très peu excité. De fait, deux lobes sont visibles sur la carte.

Lorsque l'excitation est de polarisation radiale, le champ électrique est majoritairement longitudinal¹. La structure n'est donc excitée par le faisceau que lorsque celui-ci est directement sur elle. Cela reviendrait à faire la convolution d'un anneau avec un faisceau laser focalisé dont la distribution de l'énergie électrique est très localisée avec une polarisation dégénérée dans le plan (xOy), donnant ainsi directement la forme de l'anneau sur la carte.

Le faisceau azimuthal a un champ électrique dans le plan transverse en forme d'anneau. Ainsi, l'anneau de silicium est excité lorsqu'il y a un recouvrement d'un bord de celui (par exemple le côté gauche) avec un bord du champ électrique (par exemple le côté droit), ce qui donne la couronne extérieure sur la carte. Et bien entendu il est excité plus fortement lorsque le faisceau est centré sur ce dernier, offrant un recouvrement maximal du champ électrique avec l'anneau de silicium et donc une très forte intensité de la diffusion Raman au centre de la structure.

Nous sommes donc en mesure de proposer un modèle numérique pour démontrer la réponse de la diffusion Raman. Ce dernier nous permet d'expliquer des observations mais aussi d'appréhender les réponses d'autres types de structures excitées par un de ces trois faisceaux.

1. À noter qu'une partie du champ demeure dans le plan transverse.

4.2 Résultats : cartographies de photoluminescence et façonnage du champ proche optique

4.2.1 Résultats expérimentaux : photoluminescence

La figure 4.3 montre des résultats que nous avons jugé pertinents et que nous discutons ici. Il s'agit de cartes d'exaltation de photoluminescence de la couche d'euprotium excitée par les faisceaux de polarisation linéaire verticale, radiale et azimutale en présence d'anneaux de rayons 500, 450 et 400 nm et d'épaisseurs 50 et 150 nm.

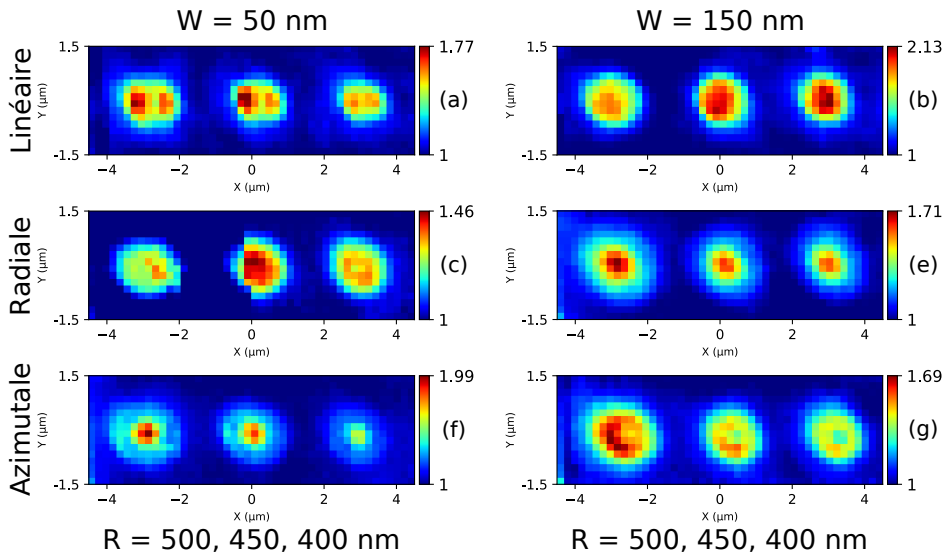


FIGURE 4.3 – Cartes de photoluminescence normalisée de la couche de $Gd_2O_3 : Eu^{3+}$. Chaque point de la carte représente l'intensité de la photoluminescence, voir chapitre 3.

Nous observons quatre faits.

Premièrement, du fait de l'homogénéité de la couche d'émetteurs, nous remarquons que la photoluminescence est exaltée uniquement en présence des structures (visible sur toutes les cartes). Ces dernières ont donc bien un effet sur la photoluminescence. En dehors de celles-ci, la photoluminescence

ne voit pas son intensité modifiée et donc l'exaltation reste à 1².

Deuxièmement, pour une polarisation donnée, le rayon et l'épaisseur de l'anneau modifient la signature. Lorsque le rayon diminue, la zone d'exaltation diminue elle aussi significativement. Ensuite la signature de l'exaltation de la photoluminescence change avec l'épaisseur de l'anneau pour la même excitatrice. Dans le cas du faisceau gaussien de polarisation linéaire verticale par exemple, nous observons deux lobes pour une épaisseur de 50 nm (fig. 4.3a) quelque soit le rayon et une tâche pour $W = 150$ nm (fig. 4.3b). Pour la polarisation radiale, la signature a une forme d'anneau pour $W = 50$ nm (fig. 4.3c) et est très piquée pour $W = 150$ nm (fig. 4.3d). Et inversement, pour la polarisation azimutale, la signature est piquée pour $W = 50$ nm (fig. 4.3f) et en forme d'anneau pour $W = 150$ nm (fig. 4.3g). En variant donc la taille et la forme de la structure, nous pouvons modifier l'exaltation de la photoluminescence.

Troisièmement, pour une structure donnée, la signature est totalement différente selon la polarisation de l'excitatrice. Dans le cas de l'épaisseur de 50 nm par exemple, sous excitation de polarisation linéaire verticale (fig. 4.3a), la signature de l'exaltation de photoluminescence est sous forme de deux lobes. Dans le cas de la polarisation radiale (fig. 4.3c), une forme d'anneau est visible tandis que la signature est très piquée au centre de l'anneau pour la polarisation azimutale (fig. 4.3f). De la sorte, en changeant la polarisation³, pour une structure donnée, on peut contrôler l'intensité de photoluminescence. Par exemple, si le laser est focalisé au centre de l'anneau de 400 nm rayon et 150 nm d'épaisseur, sous polarisation azimutale, il y a très peu d'exaltation de photoluminescence (fig. 4.3g). En changeant pour la polarisation radiale (fig. 4.3e), l'exaltation en ce même point est beaucoup plus intense. Dans ce cas précis, le passage d'une polarisation radiale à azimutale a donc un effet drastique sur le signal de photoluminescence alors même que l'intensité laser reste inchangée.

Quatrièmement, on note que l'exaltation se situe entre 1,46 et 2,13, signifiant que l'on peut dans certains cas doubler l'intensité de photoluminescence de l'euporium à l'aide d'un couple antenne/excitatrice particulier. Par exemple, bien que la plus forte exaltation mesurée dans ce jeu de données soit avec la gaussienne de polarisation linéaire sur la structure de rayon 400 nm

2. Pour rappel du chapitre 3, la normalisation se fait avec un point loin des structures pour améliorer le contraste de l'exaltation ou de la déplétion de la photoluminescence.

3. Ce qui est très simple, puisqu'il faut juste tourner la polarisation en entrée de la *q-plate* ou simplement retirer celle-ci.

4.2. Résultats : cartographies de photoluminescence et façonnage du champ proche optique

et d'épaisseur 150 nm (fig. 4.3a), la zone d'exaltation est assez large ; tandis que l'exaltation peut atteindre 1,99 sous excitation de polarisation azimutale avec un anneau de 500 nm de rayon et 50 nm d'épaisseur (fig. 4.3f) mais pour une zone d'exaltation très piquée et centrée sur la structure. Et finalement, ce même type d'exaltation se retrouve pour des structures plus épaisses : R 500 et W 150 avec la polarisation radiale (fig. 4.3e), pour une exaltation de 1,71. Les structures n'étaient pas nécessairement optimisées pour un maximum d'exaltation à 532 nm.

4.2.2 Interprétation : simulations du champ proche optique par méthode *FDTD*

Dans cette section, nous proposons une explication des résultats expérimentaux par des simulations numériques.

Pour y parvenir, nous avons numériquement calculé le champ électrique à 10 nm au dessus du substrat et au dessus de la structure et de la couche de HSQ, ainsi, on obtient le champ électrique ressenti au milieu de la couche d'oxydes dopée à l'euporium de 20 nm d'épaisseur.

Les mesures ayant été faites à 532 nm, seul le champ électrique peut exciter l'euporium (voir chapitre 1), c'est pourquoi seule la composante du champ proche électrique est étudiée *via* ce calcul. De plus, les mesures ont été faites à suffisamment faible puissance laser pour être en dehors du régime de saturation de la couche de $\text{Gd}_2\text{O}_3 : \text{Eu}^{3+}$ (voir annexe B) pour que la photoluminescence soit contrôlée majoritairement par le champ proche électrique [Gir+05 ; Maj+20].

La figure 4.4 montre les résultats des calculs pour des anneaux de 400 nm de rayon et de 50 et 150 nm d'épaisseurs éclairés par les faisceaux de polarisations linéaire verticale, radiale et azimutale. La position et la taille des anneaux sont représentées en noir sur chaque carte.

Les résultats numériques montrent effectivement une corrélation entre les cartographies simulées en champ proche et les cartographies expérimentales de photoluminescence mesurées en champ lointain. Dans le cas du faisceau gaussien de polarisation linéaire verticale, la même signature est retrouvée pour les deux épaisseurs d'anneaux (50 et 150 nm). C'est à dire deux lobes pour $W = 50$ nm de chaque côté de l'anneau et une signature plus centrée sur ce dernier pour $W = 150$ nm.

Pour la polarisation radiale, la signature en *doughnut* se retrouve au-

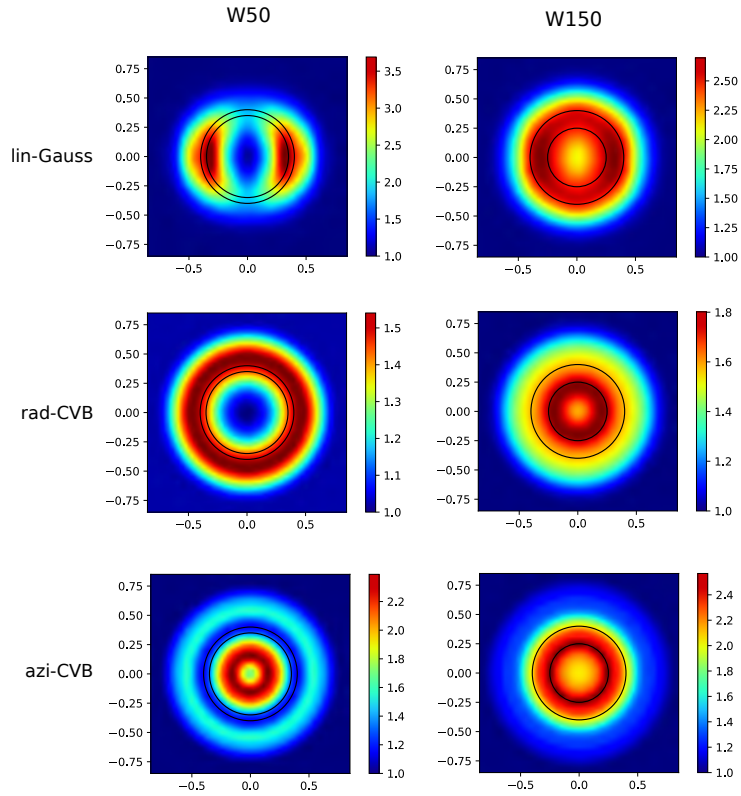


FIGURE 4.4 – Cartes d'intensité électrique intégrée à 10 nm au dessus du substrat ou de la structure, c'est à dire dans la couche d'émetteurs.

tour de l'anneau de silicium pour $W = 50$ nm, en accord avec les mesures expérimentales. Et la signature se resserre à l'intérieur de l'anneau pour $W = 150$ nm. Ce dernier point présente encore une fois un accord avec les mesures expérimentales si on prend en compte le fait que ces dernières sont moins résolues spatialement que les calculs numériques. Toute l'intensité du champ proche électrique est concentrée à l'intérieur de l'anneau comme les mesures expérimentales le suggère.

Enfin, dans le cas de la polarisation azimuthale, pour $W = 50$ nm, toute l'intensité du champ proche électrique est concentrée dans le centre de l'anneau, montrant à nouveau un accord avec les mesures expérimentales : une signature très piquée. Cependant pour $W = 150$ nm, les cartes numériques tendent à montrer qu'un *doughnut* se forme de la même sorte que pour le

cas de la polarisation radiale. C'est à dire un anneau mais qui semble plutôt coïncider avec l'anneau de silicium.

Ainsi, à faible puissance, la photoluminescence de la couche mince d'euporium est majoritairement contrôlée par le champ proche électrique qui dépend de la structure et de la polarisation de l'onde incidente [Mon+23]. Pour s'en assurer, nous compléterons cette étude avec des mesures de durée de vie.

Pour finir, une excitation à 527,5 nm, résonance dipolaire magnétique de l'euporium, permettra également d'approfondir le sujet. L'euporium devrait alors être sensible au champ proche magnétique tandis que les cartes de diffusion Raman seront toujours données par le champ électrique, ces dernières demeurent inchangées.

4.3 Les taux d'émission radiative pour sonder les effets d'émission

Jusqu'à présent, l'étude portait sur la photoluminescence totale de l'euporium contrôlée par le champ proche. Nous nous intéressons désormais aux effets d'émission, c'est à dire les effets de la densité locale d'états photoniques (deuxième terme de l'équation 1.5).

Les taux d'émission radiative permettent de s'intéresser à l'influence des densités locales d'états photoniques sur les différents canaux de relaxation et sont définis comme :

$$\beta_i = \frac{I_i}{I_{tot}} = \frac{\Gamma_i^{rad}}{\Gamma_{tot}^{rad}} \quad (4.2)$$

Où I_i est l'intensité intégrée de la transition $i = [DM, DE1, DE2]$, I_{tot} est la somme des trois contributions, Γ_i^{rad} est le taux de transition radiatif du canal d'émission i et Γ_{tot}^{rad} est la somme des trois taux de transition. Cette méthode permet de lier les intensités de photoluminescence stationnaires mesurées avec les densités locales d'états photoniques radiatives électrique et magnétique [San+18; RPN16; Cha+22].

4.3.1 Résultats

Nous montrons dans la figure 4.5 les cartes des taux d'émission radiative et les profils de ces derniers pour des anneaux de 400 nm de diamètre

et d'épaisseurs 100, 150 et 200 nm éclairés par des faisceaux de polarisations linéaire verticale, radiale et azimutale. En pointillé sur les profils sont représentées les valeurs de référence du taux d'émission radiative loin de la structure. Ces valeurs de référence sont :

- $\beta_{DM}^0 \approx 0,225$
- $\beta_{DE1}^0 \approx 0,545$
- $\beta_{DE2}^0 \approx 0,23$

Notons que, comme ce sont des poids relatifs, la somme des β sera donc toujours égale à 1.

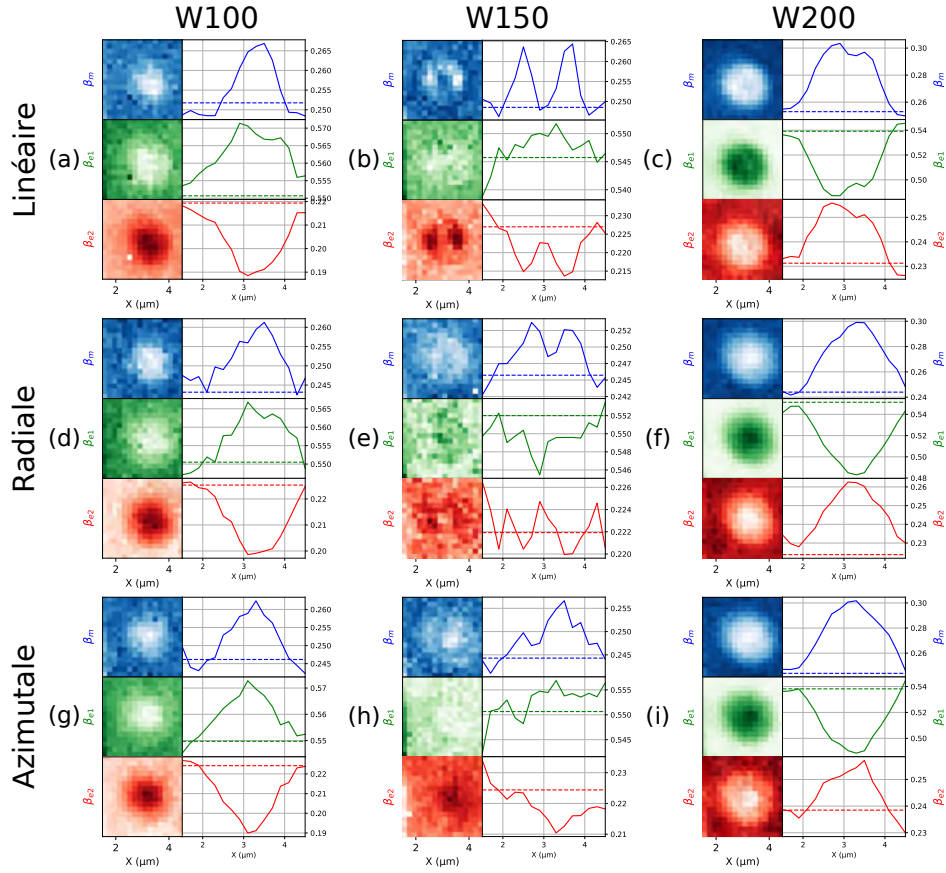


FIGURE 4.5 – Cartes et profils des taux d'émission radiative DM (β_m , en bleu), DE1 (β_{e1} , en vert) et DE2 (β_{e2} , en rouge) pour un anneau de rayon 400 nm. Les profils sont tracés à partir des valeurs le long d'une ligne horizontale sur les cartes.

Rappelons que l'on s'intéresse ici aux modifications de ces poids relatifs induites par la présence de la nano-antenne. Ainsi, si un taux d'émission radiative est supérieur à sa valeur de référence, cela signifie que la transition est favorisée, au contraire, si le taux est en dessous, la transition est défavorisée. L'échelle de couleur part du blanc (émission favorisée) et va se colorer en bleu, rouge ou vert (émission défavorisée).

Nous observons que les réponses sont très différentes selon la polarisation de l'onde incidente et la structure étudiée.

Prenons par exemple le cas de l'excitation de polarisation linéaire verticale, pour $W = 100$ nm (fig. 4.5a), les canaux d'émissions DM et DE1 sont favorisés puisque sur les cartes, au niveau de la structure, la zone est en blanc, c'est à dire que le ratio est supérieur à la valeur loin de la structure (en pointillé sur le profil). En conséquence la transition DE2 est défavorisée, ce qui signifie en réalité que cette transition est moins exaltée que les deux autres. La zone est sombre, le profil est en dessous de la valeur de référence.

Le cas $W = 200$ nm (fig. 4.5c) montre une inversion entre les transitions DE1 et DE2 par rapport au cas $W = 100$ nm : la transition DE2 est favorisée et la transition DE1 est défavorisée. Il y a donc un effet de la densité locale d'états photoniques puisque l'excitation reste inchangée (polarisation, puissance, longueur d'onde, *etc.*) et qu'une différence des taux d'émission radiative due à l'épaisseur de l'anneau est visible. Lorsque l'épaisseur est de 150 nm (fig. 4.5b), les cartes ne sont pas très lisibles, laissant supposer un régime de transition.

L'inversion de tendance entre les transitions DE1 et DE2 entre les épaisseurs $W = 100$ et $W = 200$ nm est présente aussi pour les polarisations radiale (fig. 4.5d-f) et azimutale (fig. 4.5g-i). Avec le même manque de lisibilité sur l'épaisseur de 150 nm.

Enfin, la figure 4.6 montre les cartes de taux d'émission radiative pour un anneau de 500 nm de rayon et de 50 nm d'épaisseur éclairé par les faisceaux de polarisation linéaire, radiale et azimutale.

Des différences de signatures importantes sont remarquables en fonction de l'excitatrice. Pour la polarisation linéaire, les cartes montrent une forme d'anneau pour les transitions DM et DE2 et deux lobes pour la transition DE1. Pour la polarisation radiale, une signature très piquée pour les transitions DM et DE2 et un anneau pour DE1. Et finalement, pour la polarisation azimutale, la signature est en forme d'anneau pour le canal DM et très piquée pour les deux autres, DE1 et DE2.

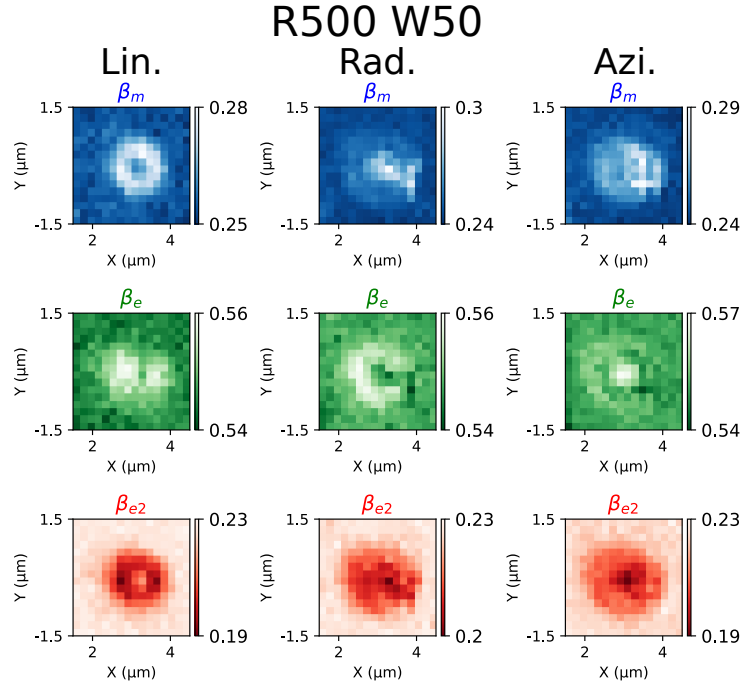


FIGURE 4.6 – Cartes de taux d'émission radiative.

4.3.2 Définition du modèle d'interprétation

La conclusion de l'analyse des taux d'émission radiative expérimentaux est que tous les paramètres de l'équation 4.1 entrent en jeu.

Nous avons donc orienté notre modèle en ce sens, en reproduisant numériquement la mesure expérimentale.

Les cartes de champs proches

La première étape pour y parvenir est de générer les champs proches électriques.

La figure 4.7 montre un organigramme du code employé. Les calculs sont faits par méthode *FDTD*.

Le principe est de tout d'abord générer un faisceau (gaussien, azimutal ou radial) à 532 nm focalisé au centre de la carte. La structure est générée en un autre endroit de la carte (par exemple supérieur gauche). La simulation calcule l'intensité du champ proche électrique en chaque point de cette carte, à 10 nm au dessus de la surface. Cette carte d'intensité est enregistrée. À

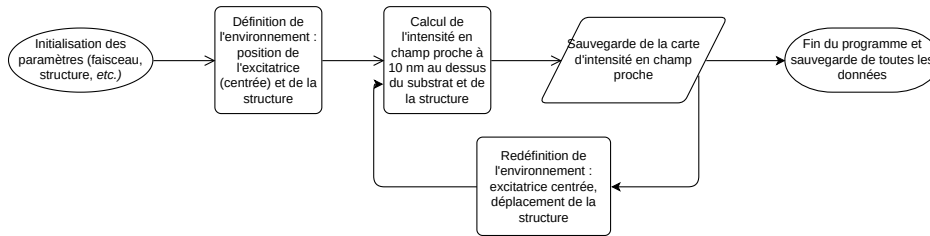


FIGURE 4.7 – Organigramme de l'algorithme de calcul des cartes de champs électriques.

la prochaine itération, la structure est déplacée vers la droite, et la simulation calcule à nouveau la carte d'intensité du champ proche électrique et l'enregistre.

Et ainsi de suite afin de faire un balayage complet de la structure, reproduisant ainsi le fonctionnement de l'expérience, pour laquelle, le spectre est acquis en chaque point de la carte en faisant un balayage à l'aide d'une platine piézoélectrique.

Finalement, le script génère N cartes de champ proche électrique correspondantes aux N positions relatives du faisceau et de la structure. On retrouve alors dans ces cartes le champ proche électrique autour de la structure mais également celui de l'excitatrice. Et ce pour chacune des trois polarisations, soit $3N$ cartes.

Les cartes de densité locale d'états photoniques radiatives

En parallèle du champ proche, nous avons besoin de connaître la densité locale d'états photoniques pour chacune des structures et pour chaque canal de transition radiative. La figure 4.8 montre l'organigramme du code relatif au calcul de la densité locale d'états photoniques.

La densité locale d'états photoniques est intrinsèque à la structure et se calcule en mesurant le rayonnement émis par des dipôles placés autour de cette dernière.

Pour cela, on génère une carte contenant la structure et un dipôle électrique (ou magnétique) placé en un endroit à 10 nm au dessus de la surface et orienté dans une direction, selon x par exemple. Le dipôle vibre et son rayonnement en champ lointain est mesuré dans un angle solide d'ouverture numérique de 0,9, correspondant à l'angle solide de l'objectif employé

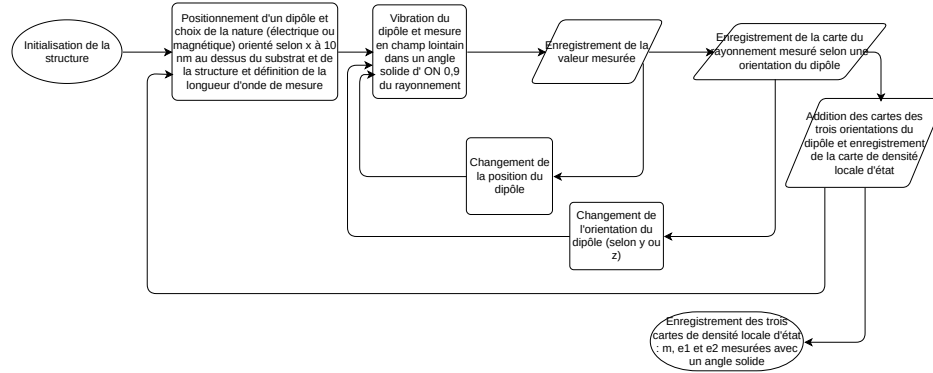


FIGURE 4.8 – Organigramme de l'algorithme de calcul des cartes de la densité locale d'états photoniques.

pour la mesure expérimentale. Le dipôle vibre dans tout le spectre, seule les longueurs d'ondes correspondantes aux émissions dipolaires électriques DE1 (610 nm) et DE2 (690 nm) avec un dipôle électrique et à l'émission dipolaire magnétique DM (590 nm) avec un dipôle magnétique sont mesurées.

La valeur ainsi mesurée est conservée, le dipôle est déplacé puis une mesure est effectuée à nouveau de sorte à avoir une carte contenant en chaque point la valeur du rayonnement du dipôle collecté dans un angle solide.

La procédure est réalisée pour chaque dipôles orientés selon x, y et z. Les trois cartes ainsi obtenues sont additionnées pour en former une seule comprenant toutes les orientations possibles à une longueur d'onde donnée.

C'est donc trois cartes qui sont fournies par le code, une pour chaque canal d'émission : DE1, DE2 et DM.

À ce stade, les données se composent de $3N$ cartes de champ proche électrique (effet de la pompe) et de 3 cartes de densité locale d'états photoniques comprenant aussi les effets de collection.

L'étape suivante est de superposer les cartes de densité locale d'états photoniques aux structures des cartes de champ proche électrique.

Calcul des taux d'émission radiative

Chacune des $3N$ cartes de champ proche électrique est multipliée par chaque carte de densité locale d'états photoniques (3 cartes, une pour chaque

canal d'émission). On obtient alors $9N$ cartes⁴.

La figure 4.9 montre un exemple pour une excitation de polarisation azimutale et pour le canal d'émission DE1. Pour une position relative de la structure en (i, j) par rapport à l'excitatrice, nous avons une carte de champ proche optique. Cette carte de champ proche optique est multipliée point à point (c'est à dire chaque couple de coordonnées (x, y)) avec la carte de *LDOS* radiative du canal d'émission considéré (ici DE1) pour laquelle la structure est centrée en (i, j) ⁵. On obtient alors, pour la position relative (i, j) de la structure par rapport à l'excitatrice une carte de dimension $x \times y$ de l'intensité rayonnée. Enfin, en sommant les $x \times y$ valeurs de cette carte, nous obtenons l'intensité totale rayonnée et collectée pour une position relative (i, j) de la structure par rapport à l'excitatrice (soit une des N positions relatives), pour une excitation donnée (ici la polarisation azimutale) et pour un canal d'émission donné (ici DE1).

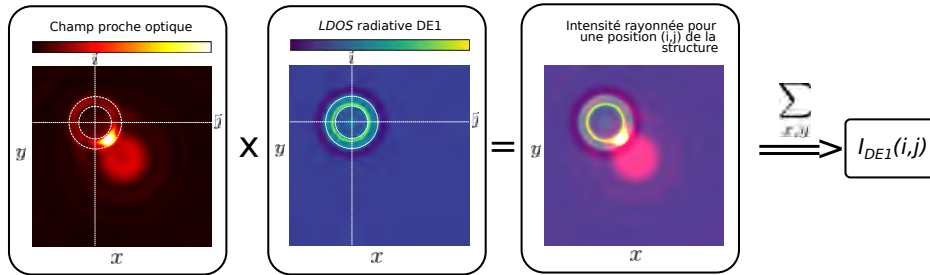


FIGURE 4.9 – Schéma de la superposition des cartes de champ proche électrique avec les cartes de densité locale d'états photoniques dans le cas de l'émission DE1 avec une excitation de polarisation azimutale.

En répétant la même opération pour chaque couple d'excitatrice avec un canal d'émission, ce sont $9N$ valeurs qui sont enregistrées. Elles permettent de tracer 9 cartes d'intensité totale rayonnée et collectée.

À ce stade, ces 9 cartes ne sont pas comparables, il faut les multiplier par la force d'oscillateur de chaque canal d'émission. Ces forces d'oscillateur sont récupérées expérimentalement sur un spectre représentatif.

Une fois cette pondération effectuée, on obtient trois cartes par type d'excitation correspondant à : I_{DM} , I_{DE1} , et I_{DE2} , les cartes d'intensité de photoluminescence des trois pics d'émission.

4. Pour les trois canaux d'émission, les trois excitatrices et les N cartes pour le balayage.
5. De cette sorte les structures des deux cartes sont superposées.

Il devient alors possible de calculer les taux d'émission radiative avec la formule 4.2. Ces taux d'émission radiative sont les quantités comparables à nos mesures expérimentales.

4.3.3 Résultats numériques et comparaison

Présentation des résultats

La figure 4.10 montre les résultats du modèle numérique et ceux de la mesure expérimentale. Pour chacune des trois polarisations (linéaire gaussienne, radiale et azimutale), les anneaux de rayon 400 nm et d'épaisseurs 50 et 200 nm sont étudiés. Dans chaque cas, la colonne de gauche montre les résultats expérimentaux et celle de droite les résultats numériques. La carte représentant le taux d'émission radiative de la transition dipolaire magnétique est en bleue et celles des transitions dipolaires électriques DE1 et DE2 sont en vert et rouge respectivement.

Bien que le modèle numérique montre des résultats comparables aux mesures expérimentales pour l'anneau R400 et W200, ce n'est pas le cas pour l'anneau R400 et W50.

Dans le cas de la transition dipolaire magnétique, la réponse semble correspondre, cependant, pour les transitions dipolaires électriques, l'effet est inversé par rapport aux mesures expérimentales ; lorsque la transition DE1 voit une augmentation expérimentalement, une déplétion est montrée numériquement et inversement pour la transition DE2.

Le changement de polarisation de l'excitation n'a d'effet que sur la forme de la signature pour l'anneau d'épaisseur 50 nm.

Les résultats expérimentaux étant répétables puisque la signature est identique dans les mêmes conditions expérimentales, c'est alors le modèle numérique qui est en défaut.

Critique du modèle numérique

Le modèle est complexe et plusieurs éléments pourrait expliquer que les résultats ne correspondent pas à la réalité expérimentale.

Tout d'abord, il n'est pas possible de savoir si le modèle est dans un régime hors-saturation (favorisant les effets de champ proche) ou dans un régime à saturation (favorisant les effets de densité locale d'états photoniques). Pour remédier à cela, il est prévu d'ajouter au modèle un paramètre qui permet-

4.3. Les taux d'émission radiative pour sonder les effets d'émission

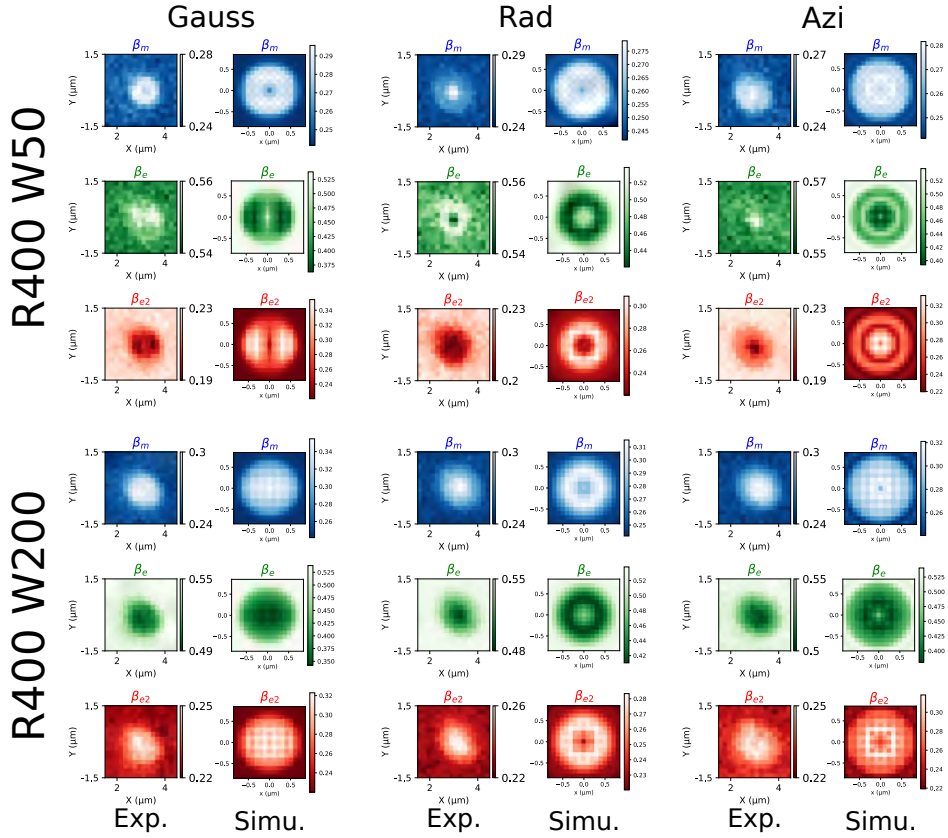


FIGURE 4.10 – Taux d'émission radiative expérimentaux et numériques.

trait de faire varier les poids relatifs du champ proche et de la densité locale d'états photoniques dans le calcul des taux d'émissions radiatives.

Ensuite, la position du cône de collection est à revoir, jusqu'à présent, ce dernier se situe sur la structure, tandis que le faisceau est toujours au centre de la carte. Expérimentalement, le cône d'injection et de collection est le même. Collecter dans le même cône numérique pourrait changer légèrement la mesure.

De plus, le modèle ne prend pas en compte l'atomistique de l'euporium. Sur le modèle actuel, l'efficacité quantique, c'est-à-dire la force d'oscillateur, est injectée manuellement à partir de données expérimentales. La saturation locale n'est pas prise en compte. Et seule une longueur d'onde est considérée pour le calcul de chaque densité locale d'états photoniques et non les bandes complètes qui font, en réalité, plusieurs dizaines de nanomètres de large.

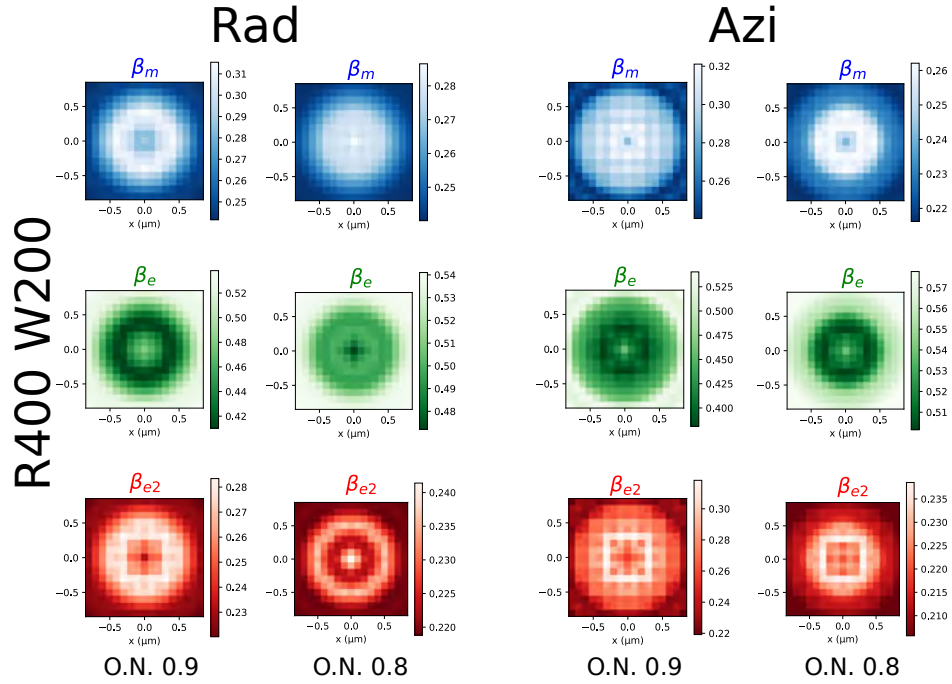


FIGURE 4.11 – Taux d'émission radiative simulés numériquement avec deux ouvertures numérique : 0,9 et 0,8.

Enfin, le modèle est hypersensible, la variation d'un paramètre peut parfois changer drastiquement les résultats. La figure 4.11 montre les effets du changement de l'ouverture numérique de l'injection et de la détection de 0,9 à 0,8 pour un anneau de rayon 400 nm et d'épaisseur 200 nm excité par des faisceaux de polarisations radiale et azimutale. La différence entre les résultats est forte lorsque nous les comparons entre les deux ouvertures numériques.

Pour toutes ces raisons, le modèle mériterait d'être davantage développé.

Chapitre 5

Conclusion et perspectives

Les objectifs de ces travaux de thèse étaient de montrer la capacité de contrôle de la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde en étudiant la photoluminescence d'émetteurs placés dans le champ proche d'antennes diélectriques à fort indice de réfraction et éclairés par des faisceaux vectoriels cylindriques focalisés.

Dans le chapitre 1, les paramètres de l'étude ont été décrits : le choix du matériau des antennes (le silicium), les émetteurs (agrégats de $\text{Gd}_2\text{O}_3 : \text{Eu}^{3+}$) et les excitatrices (polarisations linéaire, radiale et azimutale).

Nous avons décrit dans le chapitre 2 le développement d'un ensemble de simulations numériques utilisant la méthode *FDTD* avec la librairie Python MEEP dans laquelle nous avons intégré les faisceaux cylindriques de polarisation à partir des formules analytiques de Laguerre-Gauss. Une étude de cas d'une boule de silicium éclairée par des faisceaux de polarisation linéaire, azimutale et radiale a permis de mettre en évidence le contrôle de la diffusion de Mie (sélection de modes de résonances, directivité de la radiation en champ lointain et contrôle de l'exaltation en champ proche) en fonction de l'excitatrice. Nous sommes allés plus loin en proposant une étude d'anisotropie de forme montrant l'effet de la déformation d'une sphéroïde sur la génération de modes de Mie (radiatifs ou non), leur position spectrale et leur radiation en champ lointain.

Dans le chapitre 3 sont détaillés les développements expérimentaux. Nous avons développé un banc expérimental pour des mesures et des cartographies de photoluminescence stationnaire et résolue en temps. Ce banc a la particularité de pouvoir faire intervenir des faisceaux de polarisations linéaire, azimutale et radiale. Il peut également fonctionner à différentes longueurs

d'ondes en intégrant différentes sources laser. Il a été caractérisé pour s'assurer de la qualité des mesures, notamment en analysant la polarisation des faisceaux cylindriques de polarisation avec les coefficients de Stokes en deux dimensions, ce qui a nécessité le développement d'un protocole particulier et la création d'un module de mesure à intégrer au microscope. En plus des développements expérimentaux, nous avons mis en place des codes de traitement de données pour extraire les informations des cartes hyperspectrales dans le cas des mesures de photoluminescence ; et un protocole de traitement des données temporelles pour les mesures de durée de vie.

Dans le chapitre 4, nous avons montré que la photoluminescence de la couche de $\text{Gd}_2\text{O}_3 : \text{Eu}^{3+}$ et la diffusion Raman des nano-antennes de silicium sont gouvernées par le champ proche électrique. Les cartes de photoluminescence et de diffusion Raman sont façonnées par la polarisation du faisceau incident. Ces résultats sont confirmés par les cartes de champ proche électriques simulées par *FDTD*. Si le comportement hors saturation est piloté par l'excitation (le champ proche optique), nous avons observé un effet sous-jacent de la *LDOS* en comparant les taux d'émission radiative (*branching ratio*). Néanmoins, les calculs des densités locales d'états photoniques ne sont pas directement comparables aux taux d'émission radiative. Un modèle plus complet serait à développer en prenant en compte notamment l'atomistique de l'euporium (efficacité quantique, saturation, largeur de bande) et le régime de fonctionnement (favorisé les effets d'excitation ou d'émission).

Les résultats obtenus nous poussent à étendre l'étude avec une excitatrice à 527,5 nm résonante avec la transition dipolaire magnétique de l'euporium. L'intérêt serait de coupler les résonances des antennes et celle de la terre rare. On pourrait alors bénéficier des très fortes exaltations de champ magnétique à l'intérieur des nano-antennes de silicium.

On pourrait aussi étudier si la nature et la polarisation de l'excitation résonante a une influence ou non sur les raies d'émission en effectuant des mesures de photoluminescence résolues en temps.

Ces expériences sont rendues possibles par l'acquisition récente d'un laser supercontinuum et d'un convertisseur de polarisation azimutale et radiale accordables en longueur d'onde. J'ai contribué à l'installation et aux essais préliminaires de ces nouveaux dispositifs à la toute fin de ma thèse.

Résumé

Cette thèse de doctorat, couplant expériences d'optique et simulations numériques, vise à étudier les propriétés optiques en champ proche et en champ lointain de nanostructures hybrides composées d'émetteurs quantiques (ions terre rare europium Eu^{3+}) couplés à des nano-antennes diélectriques à fort indice de réfraction (typiquement des nanostructures de silicium). La fabrication des nano-structures de silicium et le dépôt des émetteurs sont effectués par des partenaires dans le cadre d'un projet de recherche financé par l'agence nationale de la recherche (ANR). La thèse comprend trois parties : (i) l'étude de la réponse optique des nanostructures de silicium excitées par des faisceaux de polarisations cylindriques, (ii) le développement expérimental permettant de cartographier la photoluminescence stationnaire et résolue en temps des systèmes hybrides, et (iii) les simulations numériques électrodynamiques pour prédire et/ou modéliser les résultats expérimentaux.

Annexe A

Diagramme de diffusion

Le diagramme de diffusion lorsque l'excitation est de polarisation linéaire à résonance dipolaire est moins symétrique, moins proche du rayonnement d'un vrai dipôle que lorsque la boule (de silicium de 165 nm de diamètre) est éclairée pour une polarisation azimutale ou radiale.

Ceci est dû à la haute symétrie de ces faisceaux selon l'axe longitudinal z que ne possède pas la polarisation linéaire. Les figures A.1a et A.1b montre que le champ électrique (à la résonance DE sous excitation radiale) et magnétique (à la résonance DM sous excitation azimutale) oscillent dans une direction à l'intérieur de la structure. Le diagramme de radiation en champ lointain est alors celui d'un vrai dipôle.

Cependant, dans le cas de la polarisation linéaire, l'axe d'oscillation est légèrement décalé, en effet, on remarquera que les rotations des champs électrique (à la résonance DE, fig. A.1c) et magnétique (à résonance DM, fig. A.1d) sont décentrées par rapport à la boule ; ceci est dû à un retard de l'onde dans la matière, impliquant une déformation de la radiation en champ lointain.

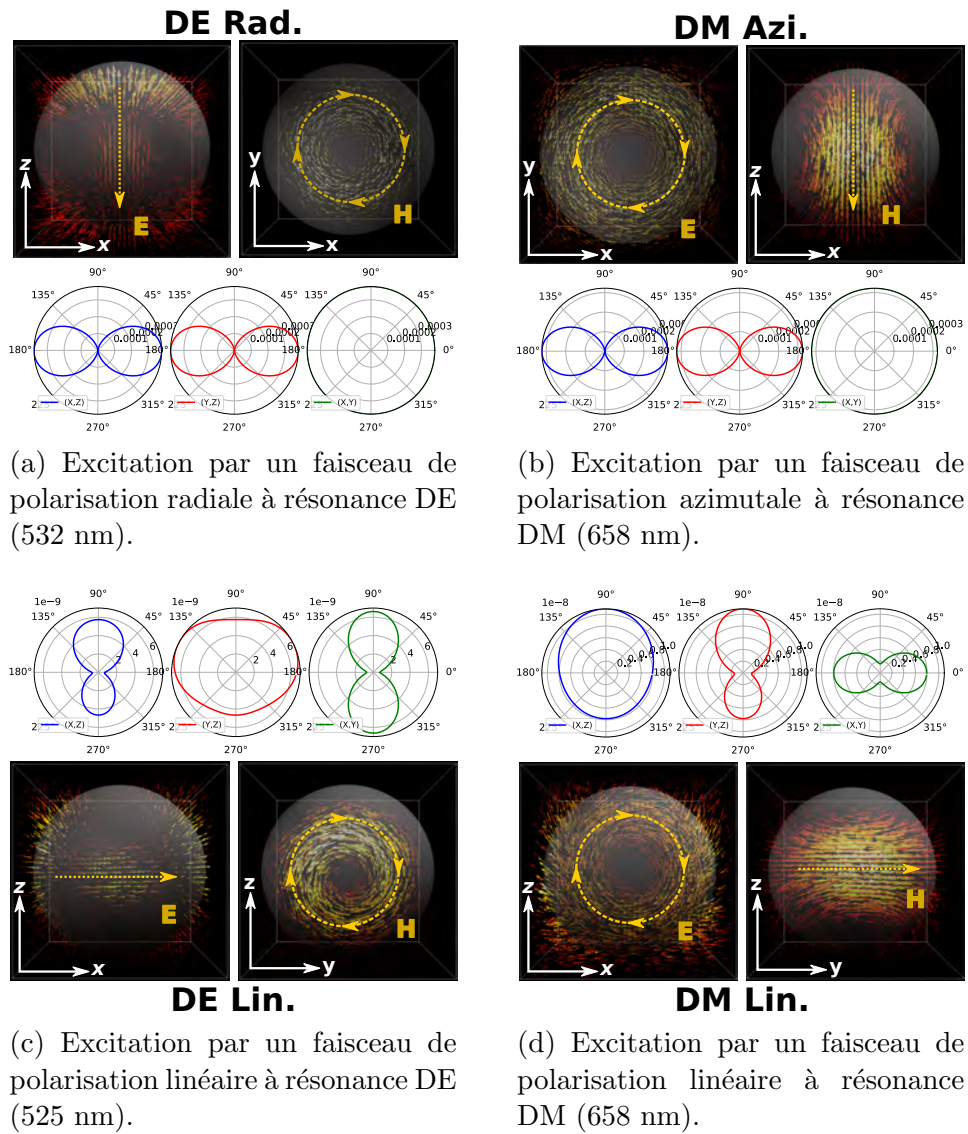


FIGURE A.1

Annexe B

Régime de saturation de l'euporium

Deux régimes sont à distingué lorsqu'un système photoluminescent est pompé par une excitatrice. Le premier est dit « hors saturation ». Dans ce régime de fonctionnement, ce sont les effets de pompe qui domine, ainsi, l'intensité de photoluminescence est proportionnelle à la puissance laser. Passer un certain seuil, on entre dans un régime dit de « saturation » (après 2 mW sur la figure B.1).

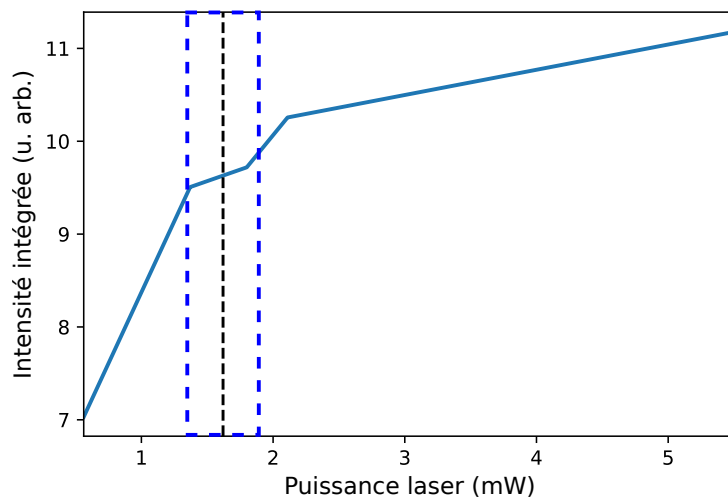


FIGURE B.1 – Intensité de la photoluminescence totale intégrée en fonction de la puissance laser.

Dans ce cas, le système photoluminescent est pompé en continue jusqu'à saturation. Augmenter la puissance laser ne modifie pas l'intensité de photoluminescence, seuls des effets d'environnement comme la densité locale d'états photoniques peuvent intervenir dans le processus d'émission pour intensifier ou non la photoluminescence. Travailler à régime de saturation permet donc de s'affranchir des effets d'excitation pour s'intéresser aux effets d'émission.

La figure B.1 montre le résultat d'une étude de l'intensité de photoluminescence en fonction de la puissance laser effectuée sur l'échantillon décrit au chapitre 3 avec un laser de polarisation linéaire. La puissance laser de fonctionnement utilisée pour les mesures expérimentales décrites au chapitre 4 est représentée par un trait noir en pointillés. La zone en pointillés bleus représente la zone de fonctionnement du régime, conséquence de l'instabilité du banc expérimental, la puissance laser fluctue dans ce domaine. Les mesures ont donc été effectuées hors de la saturation mais dans un régime proche de la transition.

Bibliographie

- [Mie08] Gustav MIE. “Sättigungsstrom und Stromkurve einer schlecht leitenden Flüssigkeit”. de. In : *Annalen der Physik* 331.8 (1908), p. 597-614.
- [Lev44] Kenneth LEVENBERG. “A method for the solution of certain non-linear problems in least squares”. en. In : *Quarterly of Applied Mathematics* 2.2 (1944), p. 164-168.
- [DeV51] J. R. DEVORE. “Refractive Indices of Rutile and Sphalerite”. en. In : *Journal of the Optical Society of America* 41.6 (juin 1951), p. 416.
- [AS83] D. E. ASPNES et A. A. STUDNA. “Dielectric functions and optical parameters of Si, Ge, GaP, GaAs, GaSb, InP, InAs, and InSb from 1.5 to 6.0 eV”. en. In : *Physical Review B* 27.2 (jan. 1983), p. 985-1009.
- [Boh83] BOHREN. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* - Craig F. Bohren, Donald R. Huffman - Google Livres. 1983.
- [Jel92] G.E. JELLISON. “Optical functions of GaAs, GaP, and Ge determined by two-channel polarization modulation ellipsometry”. en. In : *Optical Materials* 1.3 (sept. 1992), p. 151-160.
- [BA94] Stephen M. BARNETT et L. ALLEN. “Orbital angular momentum and nonparaxial light beams”. en. In : *Optics Communications* 110.5 (sept. 1994), p. 670-678.
- [GK95] Martin A. GREEN et Mark J. KEEVERS. “Optical properties of intrinsic silicon at 300 K”. en. In : *Progress in Photovoltaics : Research and Applications* 3.3 (1995), p. 189-192.

-
- [Moo95] Gordon E. MOORE. “Lithography and the future of Moore’s law”. In : sous la dir. de Marylyn H. BENNETT. Santa Clara, CA, mai 1995, p. 2.
- [Sie98] A. E. SIEGMAN. “How to (Maybe) Measure Laser Beam Quality”. EN. In : *DPSS (Diode Pumped Solid State) Lasers : Applications and Issues (1998), paper MQ1*. Optica Publishing Group, jan. 1998, MQ1.
- [Gir+05] Christian GIRARD et al. “Generalized bloch equations for optical interactions in confined geometries”. en. In : *Chemical Physics Letters* 404.1-3 (mars 2005), p. 44-48.
- [NH06] Lukas NOVOTNY et Bert HECHT. *Principles of Nano-Optics*. English. OCLC : 859642096. Cambridge : Cambridge University Press, 2006.
- [Mus+07] O. L. MUSKENS et al. “Optical scattering resonances of single and coupled dimer plasmonic nanoantennas”. en. In : *Optics Express* 15.26 (2007), p. 17736.
- [Sch+07] Beth SCHAEFER et al. “Measuring the Stokes polarization parameters”. In : *American Journal of Physics* 75.2 (jan. 2007). Publisher : American Association of Physics Teachers, p. 163-168.
- [YY07] Shaohui YAN et Baoli YAO. “Description of a radially polarized Laguerre-Gauss beam beyond the paraxial approximation”. en. In : *Optics Letters* 32.22 (nov. 2007), p. 3367.
- [Ank+08] Jeffrey N. ANKER et al. “Biosensing with plasmonic nanosensors”. en. In : *Nature Materials* 7.6 (juin 2008), p. 442-453.
- [FMT08] Roberto FENOLLOSA, Francisco MESEGUER et Michal TYMCZENKO. “Silicon Colloids : From Microcavities to Photonic Sponges”. en. In : *Adv. Mater.* (2008), p. 4.
- [HE08] Andreas HERRMANN et Doris EHRT. “Time-resolved fluorescence measurements on Dy³⁺ and Sm³⁺ doped glasses”. en. In : *Journal of Non-Crystalline Solids* 354.10-11 (fév. 2008), p. 916-926.

- [PAB08] M. PELTON, J. AIZPURUA et G. BRYANT. “Metal-nanoparticle plasmonics”. en. In : *Laser & Photonics Reviews* 2.3 (2008).
_eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/lpor.200810003>,
p. 136-159.
- [Cao+10a] Linyou CAO et al. “Resonant Germanium Nanoantenna Photodetectors”. en. In : *Nano Letters* 10.4 (avr. 2010), p. 1229-1233.
- [Cao+10b] Linyou CAO et al. “Tuning the Color of Silicon Nanostructures”. en. In : *Nano Lett.* (2010), p. 6.
- [Evl+10] Andrey B. EVLYUKHIN et al. “Optical response features of Silicon nanoparticle arrays”. en. In : *Physical Review B* 82.4 (juill. 2010), p. 045404.
- [Osk+10] Ardavan F OSKOOI et al. “Meep : A flexible free-software package for electromagnetic simulations by the FDTD method”. en. In : *Computer Physics Communications* (2010), p. 16.
- [Per+10] A. PEREZ et al. “Functional nanostructures from clusters”. en. In : *International Journal of Nanotechnology* 7.4/5/6/7/8 (2010), p. 523.
- [Sch+10] Jon A. SCHULLER et al. “Plasmonics for extreme light concentration and manipulation”. en. In : *Nature Materials* 9.3 (mars 2010), p. 193-204.
- [CC11] Alexander CERJAN et Charles CERJAN. “Orbital angular momentum of Laguerre–Gaussian beams beyond the paraxial approximation”. EN. In : *JOSA A* 28.11 (nov. 2011). Publisher : Optica Publishing Group, p. 2253-2260.
- [Gar+11] A. GARCÍA-ETXARRI et al. “Strong magnetic response of sub-micron Silicon particles in the infrared”. en. In : *Optics Express* 19.6 (mars 2011), p. 4815.
- [Evl+12] Andrey B. EVLYUKHIN et al. “Demonstration of Magnetic Dipole Resonances of Dielectric Nanospheres in the Visible Region”. en. In : *Nano Letters* 12.7 (juill. 2012), p. 3749-3755.
- [Kuz+12] Arseniy I. KUZNETSOV et al. “Magnetic light”. en. In : *Scientific Reports* 2.1 (déc. 2012), p. 492.

-
- [Rol+12] Brice ROLLY et al. “Promoting magnetic dipolar transition in trivalent lanthanide ions with lossless Mie resonances”. en. In : *Physical Review B* 85.24 (juin 2012), p. 245432.
- [Sch+12] Johannes SCHINDELIN et al. “Fiji : an open-source platform for biological-image analysis”. en. In : *Nature Methods* 9.7 (juill. 2012). Number : 7 Publisher : Nature Publishing Group, p. 676-682.
- [Alb+13] Pablo ALBELLA et al. “Low-Loss Electric and Magnetic Field-Enhanced Spectroscopy with Subwavelength Silicon Dimers”. en. In : *The Journal of Physical Chemistry C* 117.26 (juill. 2013), p. 13573-13584.
- [Fu+13] Yuan Hsing FU et al. “Directional visible light scattering by silicon nanoparticles”. en. In : *Nature Communications* 4.1 (juin 2013), p. 1527.
- [LFZ13] Wei LI, Guoying FENG et Shouhuan ZHOU. “The M^2 factor matrix of a paraxial Laguerre–Gaussian beam”. en. In : *Journal of Modern Optics* 60.9 (mai 2013), p. 704-712.
- [Sta+13] Isabelle STAUDE et al. “Tailoring Directional Scattering through Magnetic and Electric Resonances in Subwavelength Silicon Nanodisks”. en. In : *ACS Nano* 7.9 (sept. 2013), p. 7824-7832.
- [BCF14] Mark L. BRONGERSMA, Yi CUI et Shanhui FAN. “Light management for photovoltaics using high-index nanostructures”. en. In : *Nature Materials* 13.5 (mai 2014). Number : 5 Publisher : Nature Publishing Group, p. 451-460.
- [Shc+14] Maxim R. SHCHERBAKOV et al. “Enhanced Third-Harmonic Generation in Silicon Nanoparticles Driven by Magnetic Response”. en. In : *Nano Letters* 14.11 (nov. 2014), p. 6488-6492.
- [Dec+15] Manuel DECKER et al. “High-Efficiency Dielectric Huygens’ Surfaces”. en. In : *Advanced Optical Materials* 3.6 (2015). eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/adom.201400584>, p. 813-820.
- [Kas+15] Mark KASPERCZYK et al. “Excitation of Magnetic Dipole Transitions at Optical Frequencies”. en. In : *Physical Review Letters* 114.16 (avr. 2015), p. 163903.

- [Mir+15] Andrey E. MIROSHNICHENKO et al. “Nonradiating anapole modes in dielectric nanoparticles”. en. In : *Nature Communications* 6.1 (nov. 2015), p. 8069.
- [WBL15] Paweł WOŹNIAK, Peter BANZER et Gerd LEUCHS. “Selective switching of individual multipole resonances in single dielectric nanoparticles : Selective switching of individual multipole resonances in single dielectric nanoparticles”. en. In : *Laser & Photonics Reviews* 9.2 (mars 2015), p. 231-240.
- [Yan+15] J. H. YAN et al. “Magnetically induced forward scattering at visible wavelengths in silicon nanosphere oligomers”. en. In : *Nature Communications* 6.1 (nov. 2015), p. 7042.
- [Kuz+16] Arseniy I. KUZNETSOV et al. “Optically resonant dielectric nanostructures”. en. In : *Science* 354.6314 (nov. 2016), aag2472.
- [Mer+16] Juan M. MERLO et al. “Wireless communication system via nanoscale plasmonic antennas”. en. In : *Scientific Reports* 6.1 (août 2016), p. 31710.
- [RPN16] Freddy T. RABOUW, P. Tim PRINS et David J. NORRIS. “Europium-Doped NaYF₄ Nanocrystals as Probes for the Electric and Magnetic Local Density of Optical States throughout the Visible Spectral Range”. en. In : *Nano Letters* 16.11 (nov. 2016), p. 7254-7260.
- [Ree+16] REENA et al. “Tunable unidirectional scattering of ellipsoidal single nanoparticle”. en. In : *Journal of Applied Physics* 119.24 (juin 2016), p. 243102.
- [Bar+17a] Denis G. BARANOV et al. “All-dielectric nanophotonics : the quest for better materials and fabrication techniques”. en. In : *Optica* 4.7 (juill. 2017), p. 814.
- [Bar+17b] Denis G. BARANOV et al. “Modifying magnetic dipole spontaneous emission with nanophotonic structures : Modifying magnetic dipole spontaneous emission with nanophotonic structures”. en. In : *Laser & Photonics Reviews* 11.3 (mai 2017), p. 1600268.
- [Koe17] A. Femius KOENDERINK. “Single-Photon Nanoantennas”. en. In : *ACS Photonics* 4.4 (avr. 2017), p. 710-722.

-
- [Rou+17] C. ROUHABI et al. “Elaboration de couches minces de Silicium sur isolant (SOI) par le procédé Smart-Cut TM”. fr. In : *J3eA* 16 (2017), p. 1011.
- [SS17] Isabelle STAUDE et Jörg SCHILLING. “Metamaterial-inspired silicon nanophotonics”. en. In : *Nature Photonics* 11.5 (mai 2017), p. 274-284.
- [Wie+17a] Peter R. WIECHA et al. “Evolutionary multi-objective optimization of colour pixels based on dielectric nanoantennas”. en. In : *Nature Nanotechnology* 12.2 (fév. 2017), p. 163-169.
- [Wie+17b] Peter R. WIECHA et al. “Strongly Directional Scattering from Dielectric Nanowires”. en. In : *ACS Photonics* 4.8 (août 2017), p. 2036-2046.
- [LK18] Wei LIU et Yuri S. KIVSHAR. “Generalized Kerker effects in nanophotonics and meta-optics [Invited]”. en. In : *Optics Express* 26.10 (mai 2018), p. 13085.
- [San+18] Maria SANZ-PAZ et al. “Enhancing Magnetic Light Emission with All-Dielectric Optical Nanoantennas”. en. In : *Nano Letters* 18.6 (juin 2018), p. 3481-3487.
- [Bar+19] A. I. BARREDA et al. “Recent advances in high refractive index dielectric nanoantennas : Basics and applications”. en. In : *AIP Advances* 9.4 (avr. 2019), p. 040701.
- [BMB19] Sébastien BIDAULT, Mathieu MIVELLE et Nicolas BONOD. “Dielectric nanoantennas to manipulate solid-state light emission”. en. In : *Journal of Applied Physics* 126.9 (sept. 2019), p. 094104.
- [Sha+19] Hadi K. SHAMKHI et al. “Transverse Scattering and Generalized Kerker Effects in All-Dielectric Mie-Resonant Metaoptics”. en. In : *Physical Review Letters* 122.19 (mai 2019), p. 193905.
- [Wie+19] Peter R. WIECHA et al. “Enhancement of electric and magnetic dipole transition of rare-earth-doped thin films tailored by high-index dielectric nanostructures”. en. In : *Applied Optics* 58.7 (mars 2019), p. 1682.
- [Won19] Rachel WON. “Into the ‘Mie-tronic’ era”. en. In : *Nature Photonics* 13.9 (sept. 2019), p. 585-587.

- [YB19] Yuanqing YANG et Sergey I BOZHEVOLNYI. “Nonradiating anapole states in nanophotonics : from fundamentals to applications”. en. In : *Nanotechnology* 30.20 (mai 2019), p. 204001.
- [Cha+20] Reinaldo CHACON et al. “Measuring the Magnetic Dipole Transition of Single Nanorods by Spectroscopy and Fourier Microscopy”. en. In : *Physical Review Applied* 14.5 (nov. 2020), p. 054010.
- [Gao+20] Dasong GAO et al. “FLIMJ : An open-source ImageJ toolkit for fluorescence lifetime image data analysis”. en. In : *PLOS ONE* 15.12 (déc. 2020). Sous la dir. de Kristen C. MAITLAND, e0238327.
- [Liu+20] Tianji LIU et al. “Multipole and multimode engineering in Mie resonance-based metastructures”. en. In : *Nanophotonics* 9.5 (mars 2020), p. 1115-1137.
- [Maj+20] Clément MAJOREL et al. “Quantum theory of near-field optical imaging with rare-earth atomic clusters”. en. In : *Journal of the Optical Society of America B* 37.5 (mai 2020), p. 1474.
- [Man+20] Uttam MANNA et al. “Selective excitation and enhancement of multipolar resonances in dielectric nanospheres using cylindrical vector beams”. en. In : *Journal of Applied Physics* 127.3 (jan. 2020), p. 033101.
- [Par+20] John A. PARKER et al. “Excitation of Nonradiating Anapoles in Dielectric Nanospheres”. en. In : *Physical Review Letters* 124.9 (mars 2020), p. 097402.
- [Pou+20] Jean-Marie POUMIROL et al. “Unveiling the optical emission channels of monolayer semiconductors coupled to silicon nanoantennas”. In : *ACS photonics* 7.11 (2020). Publisher : American Chemical Society, p. 3106-3115.
- [San20] Vahid SANDOGHDAR. “Nano-Optics in 2020 \pm 20”. en. In : *Nano Letters* 20.7 (juill. 2020), p. 4721-4723.
- [Ji+21] Yingke JI et al. “Exciting Magnetic Dipole Mode of Split-Ring Plasmonic Nano-Resonator by Photonic Crystal Nanocavity”. en. In : *Materials* 14.23 (jan. 2021). Number : 23 Publisher : Multidisciplinary Digital Publishing Institute, p. 7330.

- [Cha+22] Reinaldo CHACON et al. “Vectorial probing of electric and magnetic transitions in variable optical environments and vice-versa”. en. In : *Nanotechnology* 33.38 (sept. 2022), p. 385705.
- [Mon+22] Martin MONTAGNAC et al. “Engineered near-and far-field optical response of dielectric nanostructures using focused cylindrical vector beams”. In : *Journal of Applied Physics* 131.13 (2022). Publisher : AIP Publishing LLC, p. 133101.
- [Mon+23] Martin MONTAGNAC et al. “Control of light emission of quantum emitters coupled to silicon nanoantenna using cylindrical vector beams”. In : *arXiv preprint arXiv :2303.12511* (2023).