

UNIVERSITÉ STRASBOURG I - LOUIS PASTEUR

ISIS

Laboratoire des Nanostructures

ASPECTS FONDAMENTAUX DE LA TRANSMISSION  
EXALTÉE DE LA LUMIÈRE À TRAVERS DES  
OUVERTURES SUB-LONGUEURS D'ONDE.

Thèse présentée pour obtenir le grade de  
Docteur de l'Université Strasbourg I - Louis Pasteur  
Discipline : Physique

par

Frédéric Przybilla

Soutenue le 17 Octobre 2008 devant la commission d'examen composée de :

|               |   |                    |
|---------------|---|--------------------|
| MM. HAACKE S. | Professeur, Université Louis Pasteur            | Président          |
| KUIPERS L.    | Professeur, FOM-AMOLF, Amsterdam                | Rapporteur externe |
| ROYER P.      | Professeur, Université de Technologie de Troyes | Rapporteur externe |
| GENET C.      | Chargé de recherche, Université Louis Pasteur   | Membre invité      |
| EBBESEN T.W.  | Professeur, Université Louis Pasteur            | Directeur de thèse |



# Remerciements

Je tiens tout d'abord à exprimer mes plus profonds remerciements à Thomas Ebbesen qui m'a accueilli au sein du laboratoire des Nanostructures alors que j'étais étudiant de Maîtrise. Je lui suis très reconnaissant pour ces années de collaboration et tout ce qu'elles m'ont permis d'apprendre sur le plan scientifique, ainsi que pour son aide, son soutien et ses conseils avisés dans mes premiers pas dans le monde de la recherche.

Toute ma reconnaissance et ma gratitude vont ensuite à Cyriaque Genet pour sa disponibilité sans faille, pour m'avoir fait partager ses grandes connaissances scientifiques, mais aussi pour ses qualités humaines. Merci de m'avoir constamment aidé durant ces quatre années de thèse.

J'adresse mes remerciements les plus respectueux à MM. Laurens Kuipers, Pascal Royer et Stefan Haacke pour l'honneur qu'ils m'ont fait en acceptant de faire partie de mon jury de thèse, et pour l'intérêt qu'ils ont témoigné pour mes travaux.

Je tiens également à exprimer toute ma gratitude à Luis Martín Moreno et Francisco García-Vidal pour leur précieuse contribution et leur patience.

Je ne saurais oublier l'aide précieuse qui m'a été apportée par Bill Barnes et son équipe qui m'ont largement aidés dans la fabrication de films métalliques suspendus.

Je remercie chaleureusement Aloyse Degiron qui, avec une grande sympathie, m'a pris sous son aile lors de mes stages au laboratoire, et qui m'a inspiré par sa rigueur scientifique.

Je suis également très reconnaissant de l'aide apportée par Eloïse Devaux, José Dintinger, Jean-Yves Laluet, Eric Laux, Aurélien Drezet, Jean-Christophe Baret et Marie-Claude Jouaiti. Je les remercie également, ainsi que mes autres collègues Stéphane Klein, Yantao Pang, Oussama Mahboub, Adi Salomon, Emmanuel Lombard, Tal Schwartz, Juemin Yi et Benedikt Stein, pour l'ambiance chaleureuse et conviviale qui a régné au sein du laboratoire durant toutes ces années. Un grand merci également à toutes les autres personnes que j'ai pu côtoyer dans l'institut.

Je remercie également ma famille et mes proches qui m'ont énormément soutenu tout au long de mes études.

Enfin, je remercie Florence, ma compagne, pour son soutien. Je lui dédie cette thèse.

# Table des matières

|   |           |
|---|-----------|
| <b>Introduction</b>   | <b>1</b>  |
| <b>1 Le phénomène de transmission optique exaltée</b>                     | <b>5</b>  |
| 1.1 Introduction . . . . .  | 5         |
| 1.2 Transmission de la lumière par une ouverture unique . . . . .         | 5         |
| 1.3 Les plasmons de surface . . . . .                                     | 10        |
| 1.4 Le phénomène de transmission exaltée . . . . .                        | 17        |
| <b>2 Fabrication et caractérisation des échantillons</b>                  | <b>29</b> |
| 2.1 Introduction . . . . .  | 29        |
| 2.2 Dépôt métallique par pulvérisation cathodique . . . . .               | 29        |
| 2.3 Gravure par lithographie à faisceau d'ions focalisés . . . . .        | 30        |
| 2.4 Caractérisation optique des structures . . . . .                      | 33        |
| <b>3 Influence du métal dans le phénomène de transmission exaltée</b>     | <b>35</b> |
| 3.1 Introduction . . . . .  | 35        |
| 3.2 Protocole expérimental . . . . .                                      | 37        |
| 3.3 Position du pic de transmission . . . . .                             | 39        |
| 3.4 Intensités de transmission . . . . .                                  | 45        |
| 3.5 Le tungstène : un cas particulier . . . . .                           | 50        |
| 3.6 Largeur des résonances . . . . .                                      | 50        |
| 3.7 Conclusion . . . . .  | 53        |
| <b>4 Effets de taille finie dans le phénomène de transmission exaltée</b> | <b>55</b> |
| 4.1 Introduction . . . . .  | 55        |
| 4.2 Profil d'émission des réseaux . . . . .                               | 56        |
| 4.3 Effets de la taille finie dans le phénomène de transmission exaltée . | 63        |

---

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 4.3.1    | Protocole expérimental . . . . .   | 63         |
| 4.3.2    | Approche théorique . . . . .   | 65         |
| 4.3.3    | Évolution de l'intensité de transmission . . . . .   | 67         |
| 4.3.4    | Évolution des largeurs des résonances . . . . .  | 68         |
| 4.4      | Efficacité relative de la transmission exaltée . . . . .   | 71         |
| 4.4.1    | Protocole expérimental . . . . .   | 71         |
| 4.4.2    | Caractérisation optique des ouvertures uniques . . . . .   | 73         |
| 4.4.3    | Résultats expérimentaux . . . . .  | 75         |
| 4.5      | Conclusion . . . . .   | 77         |
| <b>5</b> | <b>Organisations aléatoires et quasipériodiques d'ouvertures</b>   | <b>79</b>  |
| 5.1      | Introduction . . . . .   | 79         |
| 5.2      | Motif aléatoire . . . . .  | 80         |
| 5.2.1    | Protocole expérimental . . . . .   | 80         |
| 5.2.2    | Comparaison du spectre de transmission d'un réseau aléatoire<br>à celui d'une ouverture unique . . . . . | 81         |
| 5.2.3    | Ordre à courte portée . . . . .  | 84         |
| 5.3      | Quasipériodicité . . . . .   | 89         |
| 5.3.1    | Introduction . . . . .   | 90         |
| 5.3.2    | Le pavage de Penrose . . . . .   | 90         |
| 5.3.3    | Spectre de transmission d'un réseau de trous de type Penrose   | 92         |
| 5.3.4    | Conséquences de la perte d'une périodicité stricte . . . . .   | 95         |
| 5.3.5    | Arrangement local . . . . .  | 99         |
| 5.4      | Conclusion . . . . .   | 102        |
|          | <b>Conclusion et perspectives</b>  | <b>103</b> |
|          | <b>Références bibliographiques</b>   | <b>107</b> |
|          | <b>Liste des communications</b>  | <b>121</b> |

# Introduction

Une des contraintes fondamentales dans la manipulation de la lumière à très petite échelle est la transmission extrêmement faible d'une ouverture lorsque celle-ci est plus petite que la longueur d'onde de la lumière. Dans de telles ouvertures, la propagation de la lumière est en effet proscrite ; seule une transmission par effet tunnel est possible.

Néanmoins, en disposant de telles ouvertures selon un arrangement périodique dans un film métallique, on peut exalter leur transmission à une longueur d'onde donnée : la transmission du réseau ainsi formé peut être alors supérieure à la somme des transmissions des ouvertures prises individuellement. Cet effet collectif, découvert il y a maintenant une dizaine d'années au laboratoire, porte le nom de transmission exaltée.

Ce phénomène remarquable repose principalement sur le couplage résonant de la lumière avec des modes électromagnétiques piégés à la surface du métal. L'excitation de ces ondes de surface, appelées plasmons de surface, permet de collecter et de concentrer efficacement l'énergie lumineuse à la surface du réseau. De ce fait, même une partie de la lumière tombant entre les trous est transmise par les ouvertures. Sous certaines conditions, ce processus aboutit à un pourcentage de transmission de chaque trou supérieur à 100%. On parle alors de transmission extraordinaire. D'une manière générale, les spectres de transmission des réseaux d'ouvertures contiennent des pics de transmission exaltée correspondant à l'excitation de différents modes de plasmons de surface, définis par la symétrie et la périodicité de la structure.

Bien que le mécanisme principal de la transmission exaltée soit désormais largement admis dans la communauté scientifique, une compréhension approfondie de ce processus reste un travail à part entière, qui possède un intérêt du point de vue fondamental et également du point de vue des nombreuses applications de ces

structures.

Les travaux rapportés dans cette thèse s'intègrent dans la continuité des travaux du laboratoire, et se proposent de couvrir divers aspects fondamentaux de la transmission exaltée de la lumière à travers des ouvertures sub-longueurs d'onde.

Dans un premier chapitre nous introduirons les différentes notions nécessaires pour apprécier notre sujet d'étude. Un bref historique des théories de la diffraction permettra de dégager les principales propriétés optiques d'ouvertures isolées. Nous poursuivrons alors par une description détaillée des plasmons de surface, pour finalement décrire leur rôle crucial dans le phénomène de la transmission exaltée.

Nous décrirons ensuite dans un second chapitre les principales techniques expérimentales utilisées au cours de cette thèse.

Du fait du rôle fondamental des plasmons de surface dans le processus de transmission optique exaltée, le choix du métal, en tant que support de ces oscillations collectives d'électrons libres, devrait être un paramètre essentiel dans le phénomène de transmission optique exaltée. Cette question fera l'objet d'une investigation détaillée dans le chapitre 3. Une analyse systématique des spectres de transmission de réseaux de trous gravés dans différents métaux sur une large gamme spectrale dans des conditions comparables, permettra d'isoler le rôle des propriétés optiques du métal. Ces résultats montreront clairement la relation entre la transmission exaltée et les constantes diélectriques du métal et l'effet de la présence de transitions interbandes. D'autre part, bien que tous les réseaux métalliques possèdent des pics de transmission, ces mesures nous permettront de distinguer des effets purement diffractifs et des effets liés à l'excitation de modes de surface.

Dans le chapitre 4, nous nous intéresserons aux différentes conséquences liées à la taille finie des réseaux de trous. Dans un premier temps, nous étudierons la réémission de la lumière sur la face de sortie de ces structures. Ces profils d'émission mettront en évidence des effets de « bord » fortement marqués dans la direction de propagation des plasmons de surface, traduisant la nature délocalisée de ces ondes sur le réseau. Plus surprenant, nous remarquerons qu'en inclinant légèrement le réseau, l'énergie lumineuse n'est pas réémise de manière uniforme par la structure.

Dans un second temps, nous étudierons ces effets de taille finie en suivant la

réponse spectrale de réseaux composés d'un nombre croissant de trous. Ces mesures révéleront que la transmission des réseaux augmente vers un régime de saturation avec le nombre de trous. Une analyse détaillée des données nous permettra de relier la vitesse de saturation à la longueur de propagation des plasmons de surface sur le réseau de trous. Cette analyse montrera par ailleurs que la longueur de propagation des plasmons de surface augmente lorsque le diamètre des ouvertures diminue, suggérant une augmentation de l'efficacité de la transmission exaltée.

La vérification de cette hypothèse sera le fil conducteur de la dernière partie de cette étude. Ce travail nous amenera à mesurer l'efficacité relative de la transmission exaltée, c'est-à-dire le rapport entre la transmission d'un trou au sein d'un réseau périodique et la transmission d'une ouverture isolée identique. Nos mesures, empreintes d'une précaution particulière, nécessaire à l'obtention de données correctes en ce qui concerne la caractérisation optique des ouvertures uniques, permettront finalement de valider l'hypothèse proposée. Par ailleurs, ces mesures permettront d'obtenir pour la première fois des valeurs expérimentales précises de l'efficacité de la transmission exaltée par rapport à des ouvertures uniques, qui n'avait jusqu'alors été évaluée que par comparaison avec la théorie.

Au cours du chapitre 5, nous nous interrogerons sur le rôle de la périodicité des réseaux dans le couplage de la lumière aux plasmons de surface. Dans un premier temps, nous étudierons les propriétés optiques d'arrangements aléatoires de trous. Nous montrerons que, dans la limite des faibles densités moyennes de trous, ces systèmes ne présentent pas de résonances optiques clairement définies, les ouvertures du motif se comportant alors comme des ouvertures isolées. Mais nous observerons, lorsque la densité moyenne d'ouverture augmente l'apparition de modulations supplémentaires sur le spectre de transmission reliées à des interactions entre les ouvertures. Dans le cas d'arrangements aléatoires compacts nous pourrions identifier des pics de transmission clairement définis, associés à l'ordre à courte portée induit dans le système. Ces signatures spectrales seront toutefois beaucoup plus faibles que dans le cas de réseaux périodiques montrant l'importance de l'ordre à longue portée.

Dans un second temps nous étudierons alors une organisation plus subtile de l'espace : les quasicristaux. Nous nous concentrerons sur les motifs découverts par Penrose, caractérisés uniquement par un ordre à longue portée. Même si la notion

de périodicité est absente dans ce type de structure, nos mesures montreront que ces structures possèdent tout de même des pics de transmission exaltée bien définis. De plus, une comparaison détaillée de la transmission de pavages Penrose avec celle de réseaux périodiques nous permettra d'approfondir nos connaissances du mécanisme d'exaltation dans les réseaux de trous. Nos mesures démontrent notamment une réduction de la longueur de propagation des plasmons suggérant que le spectre de transmission de ces pavages Penrose peut être hautement sensible à l'arrangement local des ouvertures.

Pour clore, nous résumerons les principaux résultats obtenus au cours de cette thèse et nous aborderons quelques perspectives.

# Chapitre 1

## Le phénomène de transmission optique exaltée

### 1.1 Introduction

Le but de ce chapitre est d'introduire le phénomène de transmission optique exaltée à travers des ouvertures sub-longueurs d'onde. Sans ambitionner de résumer les recherches théoriques sur la diffraction, nous introduirons dans un premier temps les théories majeures développées pour traiter le cas d'une ouverture dans un écran opaque. Ensuite, nous décrirons l'origine et les propriétés des plasmons de surface. Nous verrons finalement que l'excitation de ces ondes de surfaces est au cœur du mécanisme de la transmission exaltée.

### 1.2 Transmission de la lumière par une ouverture unique

La transmission de la lumière par une ouverture est un processus complexe qui est encore à l'heure actuelle un domaine d'études théoriques actif. Le phénomène de diffraction en est une conséquence directe qui illustre la complexité du problème, même dans les configurations géométriques les plus élémentaires.

La première étude détaillée de cette déviation de la lumière par rapport à la propagation rectiligne nous vient de Grimaldi au cours XVII<sup>e</sup> siècle. Mais ce n'est

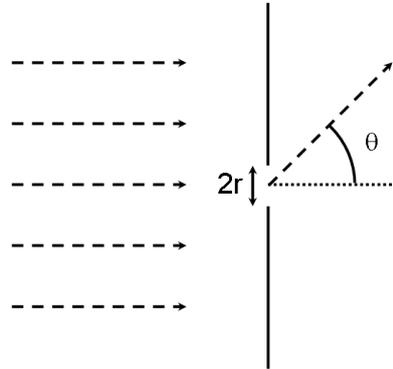
qu'au XIX<sup>e</sup> siècle qu'apparurent les premières interprétations, avec le développement de la théorie ondulatoire de la lumière initialement proposée par Huygens. La prise en compte notamment du phénomène d'interférence entre ondes lumineuses, prouvé indépendamment par Young et Fresnel, permit la formulation du célèbre principe de Huygens-Fresnel.

Ce premier modèle scalaire de la lumière stipule que chaque point non obstrué d'un front d'onde, à un instant donné, peut être considéré comme une source d'ondelettes secondaires sphériques. Pour un point quelconque situé au-delà, l'amplitude du champ optique est la superposition de toutes ces ondelettes, tenant compte de leur amplitude et de leur phase relative [1]. Dans le cas d'un écran percé par une ouverture circulaire cela revient simplement à considérer un ensemble de sources secondaires ponctuelles identiques placées au niveau de l'ouverture ayant une amplitude d'émission proportionnelle à celle du champ incident en l'absence d'écran. Cela revient ainsi à négliger totalement les effets liés à la présence des bords de l'écran. Le principe de Huygens-Fresnel fonctionne donc très bien pour des ouvertures de grande dimension, pour lesquels les champs diffractés sont faibles en comparaison des champs directement transmis.

Par la suite, cette théorie fut renforcée par une formulation mathématique rigoureuse développée par Kirchhoff, dérivant directement de l'équation d'onde différentielle. Mais l'approximation majeure subsiste, la difficulté provenant des conditions aux limites appliquées aux bords de l'objet diffractant. L'écran opaque était en effet supposé parfaitement « noir », absorbant toute onde incidente. Cette hypothèse induit des incohérences et des incompatibilités avec la théorie de l'électromagnétisme.

Dans ce contexte, les premières études théoriques de la diffusion par une sphère (théorie de Mie, diffusion de Rayleigh) [2] montrent la difficulté mathématique de tenir compte d'une constante diélectrique finie pour rendre compte des propriétés optiques du métal. L'introduction du concept de corps infiniment conducteur (et donc parfaitement réfléchissant) apparaît alors comme une approximation intéressante, en accord avec les lois de l'électromagnétisme [3]. Cette considération permit de lever certaines incohérences de la théorie de Kirchhoff, et de développer un analogue vectoriel de cette théorie.

Pour une ouverture circulaire, dans le cas particulier où l'onde incidente arrive



**Fig. 1.1** – Schéma d'une ouverture circulaire de rayon  $r$  dans un écran opaque infiniment fin. L'ouverture, illuminée en incidence normale, diffracte la lumière transmise dans tout le demi espace.

à incidence normale (voir figure 1.1), les approximations scalaires et vectorielles se réduisent à une expression commune [4] :

$$I(\theta) \simeq I_0 \frac{(kr)^2}{\pi} \left| \frac{J_1(kr \sin \theta)}{kr \sin \theta} \right|^2, \quad (1.1)$$

dans laquelle  $I(\theta)$  représente l'intensité diffractée par unité d'angle solide ( $d\Omega$ ) dans une direction  $\theta$  dans le champ lointain (diffraction de Fraunhofer),  $I_0$  l'intensité totale atteignant l'ouverture,  $k = 2\pi/\lambda$  la norme du vecteur d'onde,  $r$  le rayon de l'ouverture et  $J_1(x)$  la fonction de Bessel de première espèce d'ordre 1. Du fait de la symétrie axiale, le maximum central décrit par l'équation 1.1 correspond à un disque central très brillant connu sous le terme de disque d'Airy. Celui-ci est entouré par des anneaux concentriques d'intensité décroissante, provoqués par des interférences successivement destructives et constructives entre les rayons émergeant du centre de l'ouverture. La transmission de l'ouverture est alors définie par le rapport entre l'intensité totale transmise et  $I_0$  :

$$T = \frac{\int I(\theta) d\Omega}{I_0}. \quad (1.2)$$

Malgré tout, ce modèle reste approximatif, le champ diffracté exprimé en fonction du champ incident dans le trou ne satisfaisant pas aux conditions aux limites. Cette description est valide uniquement lorsque les effets de bords sont négligeables, c'est-

à-dire lorsque  $r \gg \lambda$ . Dans cette limite,  $T \approx 1$ .

Pour prendre en compte les effets des bords, il est nécessaire de partir uniquement des équations de Maxwell en considérant les conditions aux limites imposées par le système. Dans ce contexte, une première solution rigoureuse d'un problème de diffraction fut donnée en 1896 par Sommerfeld [3]. Il traita le cas bidimensionnel d'une onde plane incidente sur demi-plan infiniment conducteur et infiniment fin. Par la suite Bethe appliqua ce raisonnement au cas tridimensionnel d'une ouverture circulaire [5]. L'auteur parvint à la conclusion que le champ diffracté peut être considéré comme étant émis par un dipôle électrique et un dipôle magnétique. En particulier, lorsque l'ouverture est éclairée à incidence normale, seul le dipôle magnétique entre en jeu et le coefficient de transmission du trou s'écrit :

$$T = \frac{64}{27\pi^2}(kr)^4. \quad (1.3)$$

Nous remarquerons immédiatement le facteur  $(kr)^2$  supplémentaire par rapport à la solution fournie par la théorie de Kirchhoff. En accord avec le principe de complémentarité de Babinet, on reconnaît en effet la dépendance en  $\lambda^{-4}$  qui apparaît également dans la théorie de Rayleigh portant sur la diffusion de la lumière par de petites particules. Cette dépendance souligne aussi la très faible transmission attendue dans le régime où  $r \ll \lambda$ .

Par la suite Smythe, généralise la solution de Bethe à des ouvertures de forme quelconque [6]. Puis Bouwkamp corrige une erreur de calcul qui n'affectait que le champ proche, et affine le résultat de la transmission sous incidence normale en ajoutant des termes d'ordre supérieur [7, 8].

Malheureusement cette approche électromagnétique voit son champ d'application sévèrement limité par les approximations considérées, nécessaires pour traiter le problème analytiquement. La principale approximation étant de considérer le champ incident constant à l'échelle de l'ouverture, ce qui réduit le domaine de validité de l'équation 1.3 aux ouvertures très petites devant la longueur d'onde ( $r \ll \lambda$ ). En outre les suppositions d'une épaisseur infiniment fine et d'une conductivité infinie de l'écran ne sont pas du tout représentatives d'une configuration réelle.

Les solutions analytiques exactes sont rares dans les problèmes de diffraction

électromagnétique [4]. En particulier le comportement lorsque  $r \sim \lambda$  ne peut pas être traité analytiquement. Ce n'est qu'avec l'apparition des simulations numériques que le problème de la transmission de la lumière par une ouverture unique put être étudié de manière plus réaliste, en restreignant progressivement les approximations.

L'utilisation exclusive d'ouvertures sub-longueurs d'onde pour contourner la limite de diffraction dans la microscopie en champ proche [9, 10] a stimulé de nombreuses investigations théoriques [11–16] et expérimentales [17, 18]. Dans la suite, nous présenterons notamment les études réalisées sur l'influence de l'épaisseur du film et de sa conductivité finie sur les propriétés optiques d'ouvertures uniques.

Dans un premier temps, Roberts dota en 1987 le film d'une épaisseur finie [11]. Malgré une modélisation imparfaite du champ au voisinage des bords de l'ouverture, l'auteur parvient à calculer le champ transmis dans le champ lointain. Au final, l'étude montre que le coefficient de transmission déjà faible trouvé par Bethe, décroît exponentiellement avec l'épaisseur du film.

Par analogie avec la théorie des guides d'onde, lorsque le film possède une épaisseur finie, l'ouverture peut être considérée comme un guide d'onde cylindrique creux. Le champ à l'intérieur du trou ne peut alors se propager que sous la forme de modes électromagnétiques dont la symétrie dépend de la géométrie de l'ouverture. À chaque mode correspond une longueur d'onde de coupure qui définit sa limite d'existence. En particulier pour chaque géométrie de guide, il est possible de définir la longueur d'onde de coupure du mode fondamental au delà de laquelle le champ ne peut plus se propager dans le guide. Au delà de cette valeur, l'onde s'atténue exponentiellement avec la profondeur à l'intérieur du guide, l'onde est alors dite évanescente et on parle de transmission par effet tunnel. Dans le cas d'un guide d'onde cylindrique la longueur d'onde de transition entre le régime propagatif et non propagatif est  $\lambda \approx 1.7 \cdot d$ ,  $d$  étant le diamètre du profil circulaire. Dans cette thèse, nous étudierons exclusivement la transmission d'ouvertures en régime non propagatif, de telles ouvertures seront dénommées « sub-longueurs d'onde ».

Parmi les récents progrès, nous pouvons citer l'étude réalisée par Wannemacher [19]. Pour la première fois, le problème de l'ouverture sub-longueur d'onde est traité en tenant compte d'une conductivité finie pour l'écran, tenant donc compte de différents effets liés à la pénétration du champ et l'absorption du champ dans le

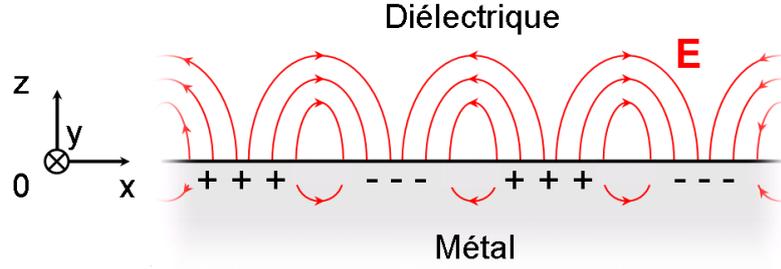
métal. Le résultat obtenu contraste avec toutes les études précédentes : la transmission prévue par ce modèle présente un pic autour de  $\lambda \approx 10 \cdot r$ . Ce pic est attribué à l'excitation de plasmons de surface par la diffraction de la lumière par les bords de l'ouverture. Notons toutefois que le système est différent des précédents du fait que le film est optiquement transparent, la lumière incidente peut traverser l'écran même en l'absence d'ouverture.

Malgré tout, de telles résonances sont désormais reproduites par les simulations numériques considérant des films optiquement épais, et sont attribuées à des modes plasmons de surface localisés [20–23] ou à des modes guidés [24–26]. Ces prédictions sont confirmées par des mesures expérimentales des propriétés d'ouvertures uniques [27–30].

### 1.3 Les plasmons de surface

Les métaux possèdent des propriétés uniques du fait qu'ils possèdent des électrons de conduction. En particulier, ces électrons libres peuvent répondre collectivement à des radiations électromagnétiques externes sous la forme d'oscillations cohérentes de la densité électronique (plasma d'électrons) à la surface du métal. De telles excitations électromagnétiques se propagent à l'interface entre un métal et un diélectrique, elles sont nommées plasmons de surface (PS) [31]. Historiquement, l'étude des ondes se propageant à l'interface entre deux milieux différents remonte au début du  $xx^e$  siècle. Nous pouvons notamment citer les travaux de Zenneck qui, dans le cadre de ses recherches sur la télégraphie sans fil, analysa en 1907 la propagation d'ondes piégées à l'interface entre un milieu conducteur et un milieu diélectrique [32]. Un demi siècle plus tard, dans le domaine de la matière condensée Ritchie démontra qu'un faisceau d'électrons accélérés pouvait exciter entre autre des ondes de densité de charge à la surface d'un feuillet métallique [33]. La première confirmation expérimentale de cette prédiction fut obtenue par Powell et Swan quelques années plus tard [34] et le terme PS fut alors introduit.

Les PS sont une solution particulière des équations de Maxwell. Ils correspondent à des ondes qui se propagent le long d'une surface métallique et dont l'amplitude décroît exponentiellement avec la distance à l'interface, dénommées de ce fait « ondes de surface ». Afin de décrire leur propriétés, nous allons considérer le système décrit sur la figure 1.2.



**Fig. 1.2** – Schéma d'une interface entre un métal et un diélectrique. Les charges et les lignes de champ associées aux plasmons de surface se propageant selon la direction  $\hat{x}$  sont également représentées.

L'espace est divisé en deux milieux semi-infinis, isotropes et homogènes, séparés par une interface plane. Pour  $z < 0$  le milieu est de nature métallique (milieu  $m$ ), caractérisé une constante diélectrique complexe  $\varepsilon_m = \varepsilon'_m + i\varepsilon''_m$ . Et pour  $z > 0$  le milieu est de nature diélectrique (milieu  $d$ ), caractérisé par une constante diélectrique purement réelle  $\varepsilon_d > 0$ . L'espace est muni d'un repère orthonormé  $(\hat{\mathbf{x}}, \hat{\mathbf{y}}, \hat{\mathbf{z}})$  tel que les vecteurs unitaires  $\hat{\mathbf{x}}$  et  $\hat{\mathbf{y}}$  définissent l'interface entre les deux milieux. Les solutions de ce problème électromagnétique qui correspondent à des ondes de surfaces se propageant dans le sens du vecteur unitaire  $\hat{\mathbf{x}}$  s'écrivent de la manière suivante [31] :

$$\mathbf{E}(x, y, z, t) = E_0 \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ \frac{k_{PS}}{k_{zj}} \end{pmatrix} e^{-ik_{zj}z} e^{i(k_{PS}x - \omega t)},$$

$$\mathbf{H}(x, y, z, t) = -E_0 \frac{\omega}{c^2 \mu_0} \begin{pmatrix} 0 \\ \frac{\varepsilon_j}{k_{zj}} \\ 0 \end{pmatrix} e^{-ik_{zj}z} e^{i(k_{PS}x - \omega t)}, \quad (1.4)$$

avec  $j = d$  pour  $z > 0$  et  $j = m$  pour  $z < 0$ .

Dans ces expressions  $k_{PS}$  est la composante parallèle à l'interface (suivant la direction  $x$ ) et  $k_{zj}$  est la composante normale à l'interface du vecteur d'onde associé à l'onde de surface. La grandeur  $k_{PS}$  étant conservée de part et d'autre de l'interface, les composantes du vecteur d'onde sont tenues de vérifier la relation :

$$k_{PS}^2 + k_{zj}^2 = \varepsilon_j k_0^2, \quad \text{avec } j = d, m. \quad (1.5)$$

Dans cette relation  $k_0 = 2\pi/\lambda$ , avec  $\lambda$  la longueur d'onde dans le vide. L'application des relations de continuité à l'interface combinée à l'équation 1.5 permet de remonter à la relation de dispersion des PS, c'est-à-dire une relation qui lie la composante du vecteur d'onde le long de la direction de propagation à la fréquence angulaire  $\omega$  [31] :

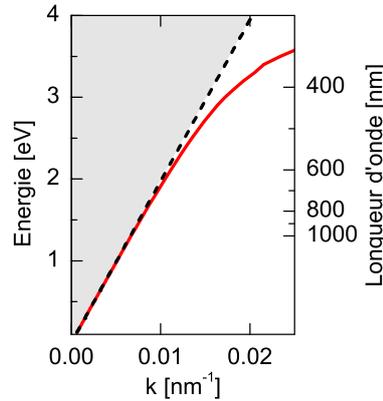
$$k_{PS} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_m \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d}}. \quad (1.6)$$

À partir des deux relations précédentes, nous pouvons définir les conditions nécessaires pour avoir une onde qui se propage le long de l'interface. En particulier, un mode (propagatif) requiert que  $k_{PS}$  soit réel. Pour simplifier la discussion, nous négligerons complètement la partie imaginaire de la constante diélectrique du métal ( $|\varepsilon_m''| \ll |\varepsilon_m'|$ ), nous ne considérerons que la partie réelle ( $\varepsilon_m \sim \varepsilon_m'$  dans les équations 1.4 et 1.6). Si nous supposons en plus  $\omega$  et  $\varepsilon_d$  réels, alors  $k_{PS}$  est également un réel si, et seulement si, le produit et la somme des constantes diélectrique apparaissant dans la relation 1.6 sont simultanément positif ou négatif. Par ailleurs, pour que les relations 1.4 décrivent effectivement une onde électromagnétique piégée à l'interface il est nécessaire que  $k_{zj}$  soit un imaginaire pur dans les deux milieux (en l'occurrence avec  $\Im(k_{zd}) < 0$  et  $\Im(k_{zm}) > 0$ ). Pour satisfaire à cette condition supplémentaire il est nécessaire que  $\varepsilon_m' < 0$ . Ainsi les conditions d'existence d'un mode d'interface se réduisent à [16] :

$$\begin{cases} \varepsilon_m' \cdot \varepsilon_d < 0 \\ \varepsilon_m' + \varepsilon_d < 0 \end{cases}. \quad (1.7)$$

De telle conditions se retrouvent expressément à l'interface entre un métal et un diélectrique dans le régime optique. En particulier, aux longueurs d'ondes du visible, la partie réelle de la constante diélectrique des métaux nobles est négative, excédant largement en valeur absolue celle des milieux diélectriques ordinaires (voir par exemple figure 3.7).

À présent nous allons discuter des propriétés fondamentales des PS à partir des relations précédentes. Pour cela, nous allons considérer le cas concret d'une interface plane entre un film d'argent (Ag) et l'air ( $\varepsilon_d = 1$ ). Nous prendrons pour l'argent



**Fig. 1.3** – Relation de dispersion des PS sur une interface argent-air. L'asymptote également représentée est la ligne de la lumière ( $k_0 = \omega/c$ ). Ces courbes illustrent l'impossibilité de couplage entre les PS et le rayonnement propagatif. En effet les photons sont situés exclusivement à gauche de la ligne de la lumière (dans la zone grisée qui correspond au cône de lumière), ainsi à une longueur d'onde donnée nous avons toujours  $k_{PS} > k_0$  : la condition de conservation de l'énergie et du moment n'est jamais vérifiée.

les constantes diélectriques tabulées dans la littérature [35]. Notons que nous avons choisi l'Ag du fait que ses propriétés optiques sont proches de celles d'un métal parfait (faible absorption) et ne présentent pas de signature optique particulière dans le visible. La présence de transitions interbandes dans le cas de l'or et le cuivre sera discuté dans le chapitre 3.

Commençons tout d'abord par remarquer les directions prises par les vecteurs  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{H}$  dans les équations 1.4. Le champ magnétique possède uniquement une composante transverse, les PS sont donc une onde transverse magnétique. Le champ électrique comporte en revanche une composante transverse  $E_z$  et une composante longitudinale  $E_x$ , déphasées l'une par rapport à l'autre, correspondant à une polarisation elliptique dans ce plan. Les lignes de champ correspondantes sont dépeintes dans la figure 1.2.

Examinons maintenant la relation de dispersion des PS qui est comparée à la ligne de la lumière sur la figure 1.3. À la vue de cette figure, une remarque très importante est à faire : comme la courbe correspondant aux PS se situe en dehors du cône de lumière, les PS sont des modes non radiatifs, c'est-à-dire évanescents.

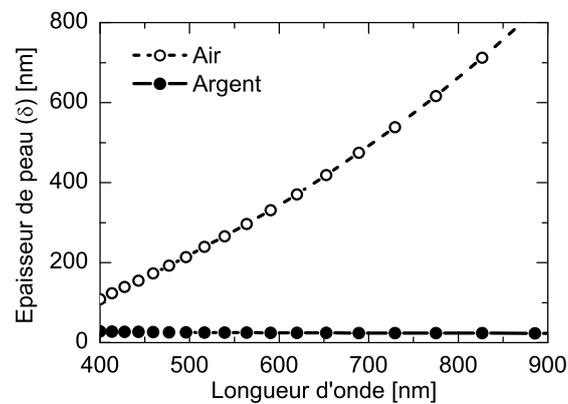
Autrement dit, la lumière ne peut pas coupler avec les PS d'une interface plane, la condition de conservation de l'énergie et du moment n'étant jamais vérifiée. Néanmoins différentes techniques permettent de combler la différence d'impulsion qui persiste entre la lumière libre et la lumière « piégée » afin d'exciter et de détecter optiquement les PS.

Historiquement deux stratégies ont principalement été développées, l'une consiste à utiliser la réflexion interne dans un prisme (configuration d'Otto et configuration de Kretschmann) [31], l'autre exploite les phénomènes de diffraction sur des défauts ou des structures périodiques [31, 36]. Ce dernier cas sera discuté en détail dans la section suivante, son principe prenant place au cœur même du phénomène de transmission exaltée. Par la suite d'autres techniques ont été développées [37], utilisant notamment des sources ponctuelles (faisceau de lumière hautement focalisé, pointe de microscope optique à champ proche) ou des défauts de surface.

Pour en revenir à la relation de dispersion des PS, nous pouvons distinguer trois régions sur la figure 1.3. Aux faibles énergies  $k_{PS} \sim k_0$ , le métal a un comportement proche de celui d'un conducteur parfait et de ce fait le champ est localisé essentiellement dans le diélectrique. Les modes PS sont alors semblables à de la lumière rasante. Aux énergies intermédiaires qui correspondent au domaine de l'infra-rouge et du visible  $k_{PS} \gtrsim k_0$ . Dans ce régime on observe un fort couplage entre l'onde électromagnétique et l'oscillation de charge. Ce régime est intéressant car il allie une très forte localisation de l'énergie à l'interface métal-diélectrique et une vitesse de propagation proche de la lumière. Enfin lorsque  $k_{PS} \gg k_0$  la vitesse de groupe est presque nulle, les PS ne se propagent presque plus (limite électrostatique).

Comme nous l'évoquions précédemment le confinement des PS à l'interface est déterminé par la composante imaginaire pure  $k_{zj}$  du vecteur d'onde. Aux vues des relations 1.4, l'amplitude du champ décroît exponentiellement comme  $\exp(-|k_{zj}||z|)$  perpendiculairement à l'interface. Nous pouvons alors définir la longueur d'atténuation  $\delta_j$  de l'onde dans le milieu  $j$ , également appelée « épaisseur de peau », comme la distance au bout de laquelle l'amplitude de l'onde est divisée par  $e$ . Nous avons alors :

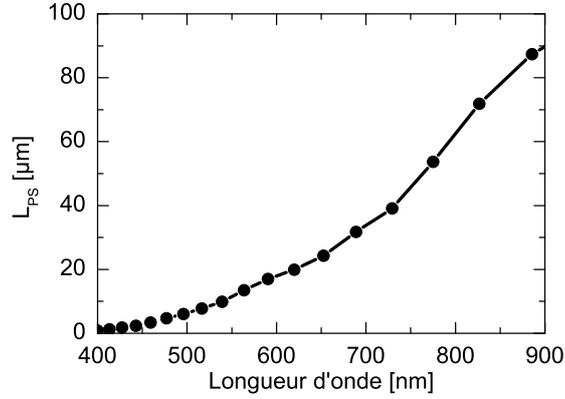
$$\delta_j = \frac{1}{|k_{zj}|}, \quad \text{avec } j = d, m. \quad (1.8)$$



**Fig. 1.4** – Longueur d’atténuation ( $\delta$ ) dans l’argent et dans l’air pour le PS à l’interface argent-air. L’épaisseur de peau dans l’argent est globalement constante, elle est d’environ 25 nm dans le visible. L’épaisseur de peau dans l’air augmente typiquement avec la longueur d’onde. Dans la limite des grandes longueurs d’onde, le champ des PS est donc de moins en moins localisé près de l’interface, ses propriétés se rapprochant de celles de la lumière rasante, conformément à la relation de dispersion des PS (voir figure 1.3).

Nous avons représenté cette grandeur dans le cas de l’interface Ag-air sur la figure 1.4. Typiquement, dans le visible cette épaisseur n’excède pas quelques dizaines de nanomètres dans le métal et quelques centaines de nanomètres dans le diélectrique adjoignant. L’excitation de modes PS permet donc de concentrer l’énergie lumineuse dans une épaisseur sub-longueur d’onde au voisinage de l’interface. La forte exaltation du champ électromagnétique à la surface du métal qui en résulte, rend les PS particulièrement sensibles à n’importe quelle perturbation à la surface du métal. Cet aspect remarquable des PS a été exploité pour caractériser les propriétés de surface des matériaux (propriétés de couche mince, défauts de surface, ...) [36] ou suivre des réactions de surface (oxydation du métal ou adsorption d’espèce moléculaire) [31, 34, 38, 39]. D’autre part l’excitation de PS permet également d’amplifier des processus photophysiques ayant lieu à la surface d’un métal (tel que la fluorescence et le Raman de molécules) [40–43].

De la même manière que précédemment nous pouvons aussi nous intéresser à l’extension longitudinale du champ plasmonique. La propagation des PS sur une interface plane est en effet limitée par les pertes dans le métal. La déperdition d’énergie provient de l’absorption du métal qui est représentée par la partie imagi-



**Fig. 1.5** – Longueur de propagation ( $L_{PS}$ ) pour le PS à l'interface argent-air.

naire non nulle de sa constante diélectrique ( $\varepsilon''_m > 0$ ). De ce fait, le vecteur d'onde des PS possède également une partie imaginaire  $k''_{PS}$  non nulle ( $k_{PS} = k'_{PS} + ik''_{PS}$ ). Ainsi, d'après les équations 1.4, l'intensité de PS se propageant le long d'une interface plane (suivant la direction  $x$ ) s'atténue exponentiellement comme  $\exp(-2k''_{PS}x)$ . Nous pouvons dès lors définir la longueur de propagation des plasmons de surface  $L_{PS}$  comme la distance au bout de laquelle l'intensité de l'onde est divisée par  $e$ . Nous avons alors :

$$L_{PS} = \frac{1}{2k''_{PS}} \simeq \frac{2}{(k'_{PS})^3} \frac{(2\pi \varepsilon'_m)^2}{\lambda^2 \varepsilon''_m}. \quad (1.9)$$

Nous avons représenté cette grandeur dans le cas de l'interface Ag-air sur la figure 1.5. Typiquement,  $L_{PS}$  avoisine plusieurs dizaines de micromètres dans le visible, augmentant en direction des grandes longueurs d'onde.

Expérimentalement, le temps de vie d'un PS (qui est proportionnel à sa longueur de propagation [44]) peut être également réduit par des mécanismes de perte non radiatifs, comme par exemple la diffusion par la rugosité du film. Néanmoins, ces pertes peuvent être minimisées par une préparation adéquate de la surface métallique, et les expériences montrent que les PS subsistent après une distance de plusieurs dizaines voir centaines de longueurs d'onde. Si l'on ajoute à cela le développement des techniques modernes de fabrication permettant de texturer la matière à l'échelle du nanomètre, il est possible d'envisager la création de circuits plasmoniques pour contrôler efficacement des flux de PS. Le développement et l'intégration de tels composants dans des circuits optiques est au centre de nom-

breux travaux récents (voir références dans [45]).

Au cours de cette section, nous avons rappelé les principales propriétés des PS à partir de l'équation d'onde obtenue dans le cas d'une interface plane. Mais signalons que, comme nous l'évoquions lors de la section précédente, la pénétration du champ dans le film métallique peut également activer des résonances PS localisées (PSL) sur les bords d'une ouverture [20,21,27,28,30]. À l'opposé des PS qui sont des modes propagatifs, les PSL sont des modes non propagatifs associés à une nanostructure métallique [37]. Ces résonances sont analogues aux modes localisés observés dans le cas de nanoparticules métalliques, les PSL sont totalement déterminées par la forme et de la taille des ouvertures. Elles sont accompagnées d'une exaltation du champ au bord de l'ouverture qui peut augmenter la transmission celle-ci à la longueur d'onde de la résonance PSL.

Bien que les modes PSL d'une ouverture puissent déjà exalter sa transmission à une longueur d'onde donnée, l'excitation de mode PS (délocalisé) dans le cadre du phénomène de transmission exaltée (voir section suivante) reste le processus d'exaltation dominant [46].

## 1.4 Le phénomène de transmission exaltée

Les études du milieu XX<sup>e</sup> siècle sur les propriétés optiques de trous sub-longueurs d'onde idéalisés, c'est-à-dire d'ouvertures dans des écrans parfaitement conducteurs d'épaisseurs nulles, ont prévu des transmissions extrêmement faibles [5, 7]. Par la suite, le développement des simulations numériques permit de traiter ce cas pour un écran d'épaisseur finie [11]. La prédiction originale de Bethe fut même revue à la baisse ; la lumière ne pouvant se propager dans de telles ouvertures, la transmission ne s'effectue que par un effet tunnel, dont l'efficacité typique diminue exponentiellement avec l'épaisseur du film. Ces prédictions ont depuis été associées à une contrainte fondamentale dans la manipulation de la lumière à très petite échelle.

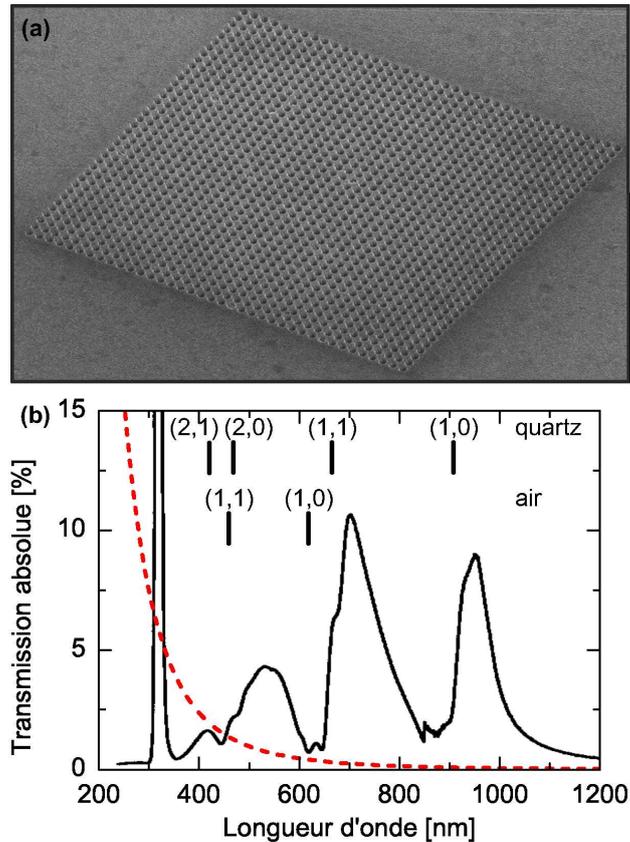
Dans ce contexte, en 1998, les investigations de Ebbesen *et al.* ont bousculé les esprits en démontrant que la transmission d'une ouverture pouvait être exaltée de façon dramatique lorsque l'écran est texturé périodiquement [47, 48]. Leurs mesures sur des réseaux de trous sub-longueurs d'onde percés dans des films métalliques opaques révèlent des transmissions dépassant de plus de cent fois les prédictions

« optimistes » du modèle de Bethe. Remarquablement, la transmission normalisée à l'aire occupée peut même dépasser à certaines longueurs d'onde la valeur unité. Autrement dit, une partie de la lumière tombant entre les ouvertures composant le réseau est tout de même transmise. L'origine de cette exaltation a été attribuée à l'excitation de PS par la structure périodique. Cette découverte a immédiatement stimulé de nombreuses études expérimentales et théoriques (voir revues [49–53]) afin de comprendre le détail du mécanisme. L'immense majorité d'entre elles ont depuis largement validé l'hypothèse selon laquelle l'excitation de PS est au cœur du mécanisme du phénomène de transmission exaltée à travers des ouvertures sub-longueurs d'onde.

L'objectif de cette section est de présenter les principes fondamentaux de la transmission exaltée. Pour cela nous décrirons les résultats majeurs accumulés sur le sujet.

La transmission optique exaltée a été observée pour la première fois à travers un réseau à maille carrée d'ouvertures circulaires, gravé dans un film d'argent opaque évaporé sur substrat de quartz. La figure 1.6 reproduit le spectre de transmission en valeur absolue obtenu lors des premières études. Nous remarquons une série de pics distincts dont l'intensité dépasse largement les prédictions de Bethe (courbe discontinue rouge).

Deux termes sont couramment employés dans la littérature en référence à ce même phénomène : « transmission exaltée » ou « transmission extraordinaire ». Le terme « transmission exaltée » est sans aucun doute le plus difficile à définir car sa signification dépend de la référence choisie. Si une ouverture unique gravée dans le même film que le réseau de trous est choisie comme référence, sa transmission devra impérativement être mesurée dans tout le demi espace (c'est-à-dire intégrée sur un angle solide  $\Omega = 2\pi$  sr, voir relation 1.2) car son profil d'émission n'est pas isotrope. Ce point sera discuté en détail au cours du chapitre 4, section 4.4.2. À cela s'ajoute un problème immédiat du fait que la transmission d'une ouverture unique puisse avoir sa propre signature spectrale liée à l'existence de modes PSL (voir section 1.3), pouvant déjà exalter la transmission à leur longueur d'onde de résonance. En conséquence, l'exaltation de la transmission d'un réseau ainsi définie est totalement dépendante des facteurs géométriques du réseau (voir plus bas) pour une forme d'ouverture déterminée. Elle est de ce fait également dépendante de la

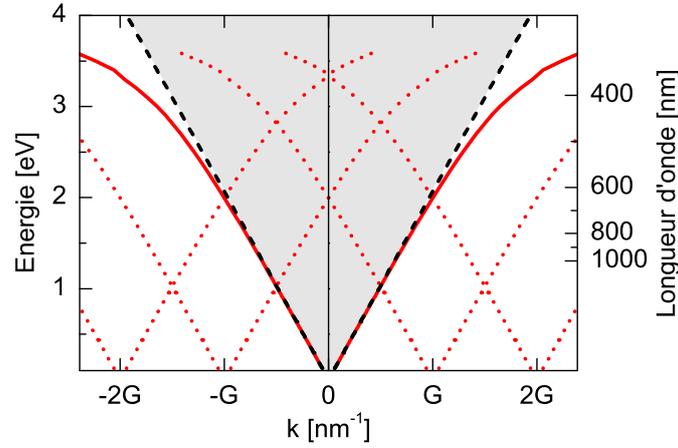


**Fig. 1.6** – (a) Vue au microscope électronique à balayage d'un réseau de trous sub-longueurs d'onde. (b) (Adapté de [48]) Spectre de transmission à incidence normale d'un réseau de trous gravé dans un film d'argent de 200 nm déposé sur substrat en quartz. Les ouvertures ont un diamètre de 150 nm et sont disposées selon une maille carré de 600 nm de période. Les marques verticales indiquent les longueurs d'onde des modes PS calculées à l'aide de la relation 1.11 pour les deux interfaces (air et quartz). La courbe rouge discontinue correspond aux prédictions de Bethe (relation 1.3) calculée en considérant le taux de remplissage du réseau ( $\rho \approx 0.05$ ).

longueur d'onde.

Deux alternatives sont donc envisageables pour comparer la transmission aux travers de réseaux de trous possédant des paramètres différents ; soit une comparaison directe de leur transmission absolue  $T_{Abs}$  ou la détermination de la transmission en terme de rapport  $T_N$  entre le flux de photons transmis par unité de surface occupée par les ouvertures et le flux incident de photons par unité de surface.

Cette dernière solution était déjà adoptée par Bethe [5]. Cela lui permettait



**Fig. 1.7** – Relation de dispersion des PS pour une interface texturée périodiquement dans une direction. En référence au spectre de la figure 1.6 nous avons choisi le cas d’une interface argent-air avec une modulation périodique de période  $p = 600$  nm ( $G = 2\pi/p$ ). Par souci de clarté nous n’avons pas représenté les ouvertures de bandes interdites. Le cône de lumière est également représenté (zone grisée). Nous remarquons immédiatement que sur une surface périodique un couplage entre la lumière et les PS est possible.

de comparer directement des ouvertures de diamètres différents pour une longueur d’onde donnée ou vice versa. Dans ce contexte, nous définissons la transmission optique extraordinaire comme étant les conditions d’exaltation pour lesquelles  $T_N$  est plus grand que l’unité. En d’autres termes, lorsque le flux émergent d’une ouverture est plus grand que le flux incident sur cette même ouverture.

Revenons aux premières données expérimentales de la figure 1.6. Dans le cas de cette expérience la fraction d’aire occupée par les trous est  $\rho \approx 0.05$ . Par définition  $T_N$ , la transmission normalisée par rapport l’aire occupée par les trous, vaut donc simplement  $T_N = T_{Abs}/\rho$ . Comme le remarquèrent les auteurs, cette valeur dépasse la valeur unité à certaines longueurs d’onde, en particulier  $T_N \approx 2$  pour les deux pics situés aux plus grandes longueurs d’onde sur le spectre. Cette exaltation extraordinaire de la transmission a été attribuée à l’excitation de PS sur la structure périodique.

Nous l’évoquions dans la section précédente : la diffraction de la lumière par une structure périodique peut permettre l’excitation de PS. Ce phénomène confère en effet une impulsion supplémentaire à l’onde lumineuse incidente, sous la forme de mul-

tiples entiers des vecteurs réciproques fondamentaux  $\mathbf{G}$  de la structure périodique, ce qui permet de combler à certaines longueurs d'onde la différence de vecteur d'onde entre les PS et la lumière « libre » (voir figure 1.3). La condition de couplage aux PS peut alors s'écrire sous la forme d'une relation de type Bragg à la surface du réseau, entre le vecteur d'onde des plasmons  $\mathbf{k}_{\text{PS}}$ , la composante le long de la surface du vecteur d'onde de la lumière incidente  $\mathbf{k}_{0//}$  et  $\mathbf{G}$  :

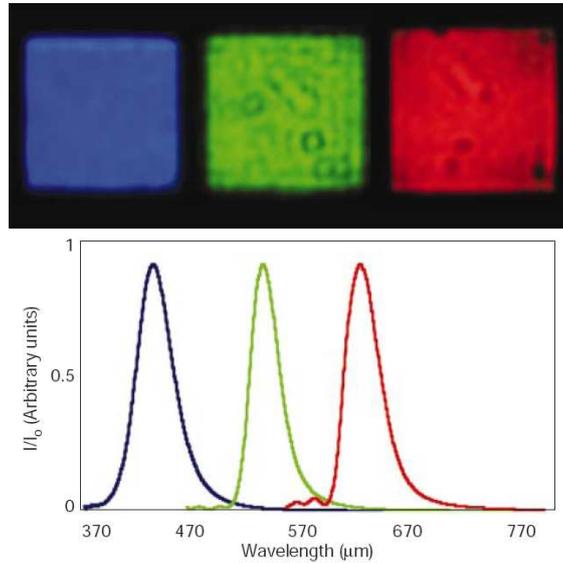
$$\mathbf{k}_{\text{PS}}(\lambda) = \mathbf{k}_{0//}(\lambda) + n \cdot \mathbf{G}, \quad \text{avec } n \in \mathbb{Z}. \quad (1.10)$$

Par définition,  $\mathbf{k}_{\text{PS}}$ ,  $\mathbf{k}_{0//}$  et  $\mathbf{G}$  sont dans le plan de la structure.

Cette condition de couplage aux PS peut être facilement décrite dans le cas d'un réseau périodique unidimensionnel. Dans ce cas, une périodicité  $p$  correspond à un vecteur réciproque fondamental de norme  $G = 2\pi/p$ . Nous pouvons ainsi simplement construire la courbe de dispersion associée à cette modulation périodique de l'interface par translation successive de la relation de dispersion des PS sur une interface plane (voir figure 1.7) [54]. Sur cette représentation nous remarquons immédiatement qu'un couplage entre les photons et les plasmons de surface est possible. En particulier, lorsque l'onde incidente arrive à incidence normale (configuration expérimentale correspondant au spectre de la figure 1.6),  $\mathbf{k}_{0//} = \mathbf{0}$ ; cela revient donc à se cantonner à l'axe des ordonnées ( $k = 0$ ). Les croisements entre des différentes courbes de dispersion et cet axe indiquent ainsi la longueur d'onde des différentes résonances PS accessible à incidence normale pour une période donnée.

Précisons que ce phénomène de couplage aux PS est parfaitement réversible : les modes PS se propageant sur une surface texturée périodiquement peuvent découpler radiativement en vertu de la même égalité [31, 54].

Les premières études expérimentales ont immédiatement remarqué que les conditions d'apparition des pics de transmission sont exactement celles à réunir pour exciter des PS aux interfaces de la structures, indiquant le rôle crucial des PS dans le processus. De nombreuses investigations ont depuis confirmé l'implication clé des PS dans le phénomène de transmission exaltée (voir revues [49–53]). Le mécanisme communément accepté peut être décomposé qualitativement de la façon suivante. Tout d'abord, la diffraction d'une onde plane incidente sur l'arrangement périodique de trous génère des PS satisfaisant la relation de Bragg. Leur excitation entraîne



**Fig. 1.8** – (D’après [55]) Photographies et spectres de réseaux de trous de période croissante, illuminés en transmission. Les structures ont été fabriquées dans un même film d’argent suspendu de 300 nm d’épaisseur. De gauche à droite les périodes valent respectivement 300, 450 et 550 nm pour des diamètres de 155, 180 et 225 nm. Seul le pic de plus basse énergie, principal responsable de la couleur des réseaux, est représenté.

une amplification importante du champ sur la face d’entrée de la structure, qui contribue à augmenter considérablement le champ total transmis par effet tunnel à travers les ouvertures sub-longueurs d’onde. Résultant finalement en une exaltation de l’intensité transmise dans le champ lointain.

Précisons que les PS peuvent être également générés sur la face de sortie de la structure par la lumière directement transmise à travers les trous. Ainsi, en accord, avec le principe de réciprocité les spectres de transmission des réseaux de trous ne dépendent pas de la face d’illumination.

Notons par ailleurs qu’une autre caractéristique intéressante des réseaux résulte du fait que chaque trou de la face de sortie agit comme une source ponctuelle de lumière. Ainsi, comme le prédit le principe de Huygens-Fresnel, si une onde plane illumine le réseau, alors une onde plane est symétriquement reconstruite en sortie.

La position des pics de transmission de réseaux de trous correspond ainsi à la longueur d’onde des différentes résonances PS, rendues possible par l’arrangement

périodique des ouvertures. Dans le cas du réseau à maille carrée de la figure 1.6, il est nécessaire de tenir compte des deux vecteurs réciproques  $\mathbf{G}_x = 2\pi/p \hat{x}$  et  $\mathbf{G}_y = 2\pi/p \hat{y}$  dans la relation de couplage aux PS. Les relations 1.6 et 1.10 permettent alors de dériver facilement la longueur d'onde des maxima de transmission  $\lambda_{max}(n, m)$  pour un faisceau incident non polarisé et normal à la surface du réseau :

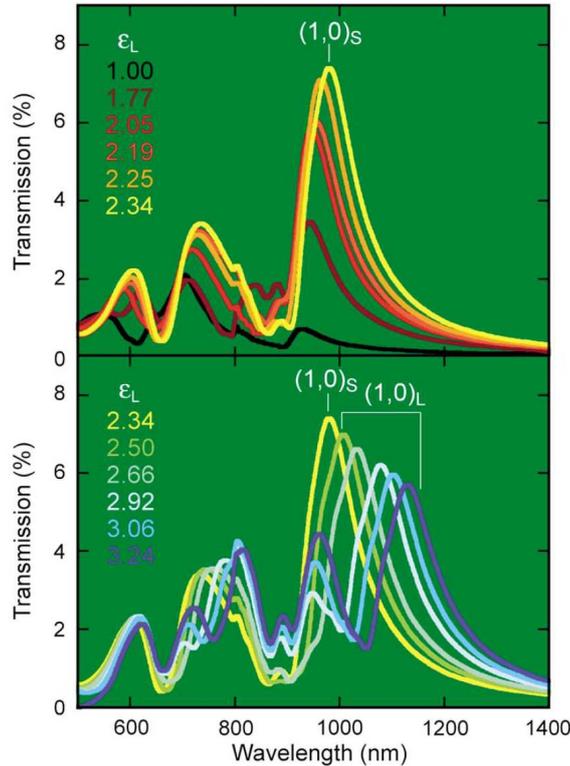
$$\lambda_{max}(n, m) = \frac{p}{\sqrt{n^2 + m^2}} \Re \left( \sqrt{\frac{\varepsilon_m \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d}} \right), \quad \text{avec } (n, m) \in \mathbb{Z}^2. \quad (1.11)$$

Les ordres croissants de diffraction  $(n, m)$  du réseau correspondent ainsi à des pics de longueur d'onde décroissante. La relation 1.10 étant vectorielle, le couple d'entiers  $(n, m)$  indique également la direction de propagation des différents modes PS excités, ainsi que leur polarisation. Ces caractéristiques ont pu être vérifiées grâce aux techniques de champ proche [44] mais également en champ lointain [56, 57]

Remarquons qu'à incidence normale un certain nombre de mode sont dégénérés. Cette remarque est valable par exemple pour les modes  $(\pm 1, 0)$  et  $(0, \pm 1)$  qui se propagent selon les axes principaux du réseau. Sous incidence normale la convention sera donc de référer le pic correspondant sur le spectre de transmission uniquement par l'indice  $(1, 0)$ . Notons également que dans la configuration expérimentale de la figure 1.6 la structure possède des interfaces d'indices différents, une interface argent-air et une interface argent-verre. Les PS étant définis par la nature de l'interface, le spectre de cette structure possède naturellement deux série de pics correspondant aux résonances PS des deux interfaces. La position des pics prévue par la relation 1.10, en tenant compte des deux interfaces de la structure, est indiquée sur la figure 1.6.

Les positions des pics de transmission sont donc totalement déterminées par la configuration géométrique du réseau et des milieux diélectriques adjacents. Ainsi une simple variation de la période du réseau permet de décaler les différents pics de transmission. Ce cas de figure est illustré sur la figure 1.8. En augmentant simplement la période, les pics se déplacent progressivement vers les grandes longueurs d'onde. Par cette méthode, il est possible de couvrir facilement une très large gamme spectrale, permettant d'envisager l'utilisation des réseaux de trous en tant que filtre.

Comme nous le signalions précédemment les PS sont définis par la nature de l'interface, il est de ce fait également possible de modifier la position des résonances en



**Fig. 1.9** – (D’après [58]) Spectres de transmission d’un réseau de trous (période : 600 nm, diamètre : 200 nm) gravé dans un film d’or (épaisseur : 250 nm) déposé sur un substrat de quartz ( $\varepsilon_S = 2.31$ ), en fonction de la constante diélectrique  $\varepsilon_L$  du liquide d’indice en contact avec la face opposée du film. Le pic  $(1,0)_L$  se déplace avec  $\varepsilon_L$ , la transmission passant par un maximum lorsque  $\varepsilon_L \simeq \varepsilon_S$ .

ajustant l’indice de réfraction du milieu diélectrique. Une étude détaillée sur le sujet a été menée. Les résultats principaux sont reproduits sur la figure 1.9. En plus de vérifier expérimentalement le point précédent, ils montrent qu’en ajustant l’indice des deux interfaces (en utilisant des liquides d’indice), il est possible d’augmenter significativement l’efficacité du processus de transmission exaltée. Cette observation est en parfait accord avec le mécanisme de la transmission exaltée que nous avons présenté précédemment. En effet, lorsque les interfaces de part et d’autre de la structure sont identiques, des résonances PS ont lieu à la même fréquence, renforçant symétriquement le champ aux deux extrémités des ouvertures, augmentant en conséquence l’efficacité du processus de transmission exaltée.

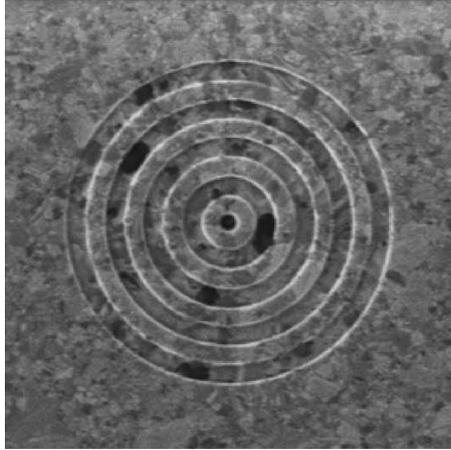
Quelques précisions doivent toutefois être apportées. Cette description intuitive

est en effet valable uniquement pour des films relativement épais. Des prédictions théoriques [59] vérifiées expérimentalement [60] ont montré qu'il existe en fait deux régimes de transmission. Pour des films épais, la transmission augmente selon une loi exponentielle lorsque l'épaisseur du film métallique diminue (en accord avec la transmission par effet tunnel). Toutefois lorsque l'épaisseur devient assez fine, tout en restant optiquement opaque (typiquement aux alentours de 200 nm), les modes PS associés aux deux interfaces peuvent coupler à travers les ouvertures, entraînant une saturation du coefficient de transmission pour les petites profondeurs d'ouvertures.

Nous remarquerons que la relation 1.11 ne prédit pas exactement la position des pics de transmission (voir figure 1.6). Nous observons typiquement un léger décalage vers le rouge des pics par rapport aux positions calculées. Ces écarts sont peu surprenants puisque l'équation 1.11 a été déduite de la relation de dispersion des PS sur une interface plane, négligeant de ce fait totalement la présence des ouvertures qui composent le réseau.

En se basant sur les travaux de Fano [61], des auteurs ont montré qu'il est possible d'interpréter la forme de la réponse spectrale des réseaux de trous [62, 63]. Dans ce cadre, la transmission exaltée est décrite comme une interférence entre deux canaux de transmission : un canal non résonant associé à la transmission directe à travers les ouvertures et un canal résonant associé aux résonances PS. La résonance lorentzienne associée au canal résonant est modulée par les interférences constructives et destructives entre les deux canaux de transmission donnant lieu à un maximum et un minimum de transmission. L'asymétrie de la résonance reflète alors la contribution relative entre les deux canaux. Typiquement, les pics de transmission exaltée sont caractérisés par une large queue s'étalant vers les grandes longueurs d'onde et précédés aux plus courtes longueurs d'onde d'un minima prononcé, marquant en fait la résonance PS (position calculée à partir de la relation 1.11).

Outre la position des pics, la largeur des pics est également une signature spectrale intéressante car elle est une mesure du temps de vie de la résonance. Des travaux expérimentaux [44] ont montré que la longueur de propagation des PS sur un réseau, mesurée par des technique de champ proche, correspond à celle déduite de la largeur des pics de transmission dans le champ lointain.



**Fig. 1.10** – (D’après [64]) Vue par imagerie FIB (faisceau d’ions focalisés) d’une cible (en anglais « bull’s eye »). La structure est composée d’un trou central débouchant entouré d’anneaux périodiques gravés uniquement en surface du film d’argent suspendu (périodicité des anneaux : 500 nm, profondeur des anneaux : 60 nm, diamètre de l’ouverture : 250 nm et épaisseur du film : 300 nm).

Nous venons de décrire l’influence de la période, de l’indice du milieu diélectrique et de l’épaisseur du film. Comme nous l’introduisons à la fin de la section précédente, un autre paramètre à également été le centre de nombreuses investigations : la forme des ouvertures. Des ouvertures de type coaxial ne présentant pas de fréquence de coupure ont été rapidement proposées [65] puis étudiées expérimentalement [66, 67]. Dans le même ordre d’idées les ouvertures en « C » ont également été considérées [68, 69]. Les réseaux de fentes, sub-longueurs d’onde dans une direction et propagatives dans l’autre, ont été les premiers systèmes étudiés théoriquement [70, 71], caractérisés expérimentalement en détail par la suite [72]. Les trous elliptiques [73, 74] et rectangulaires [75] ont été étudiés en détail, en relation avec leur fréquence de coupure dépendante de l’axe de polarisation de la lumière incidente (dichroïsme), et en relation aux PSL [25–28, 30, 46].

L’influence d’autres paramètres, comme la symétrie du réseau [76, 77], la taille des ouvertures [78] et du réseau [76, 79, 80] est moins bien connue, et sera discutée au cours de cette thèse (chapitre 4 et 5)

L’effet du métal a également été pointé par certaines études, qui soulignèrent simplement que les très bon conducteur comme l’argent et l’or favorisent l’exalta-

tion [48, 76, 81]. Ce paramètre reste largement méconnu sur le plan expérimental et théorique, le chapitre 3 de cette thèse lui sera entièrement consacrée.

En conclusion, le principe de la transmission exaltée repose sur la génération de champs électromagnétiques intenses aux interfaces des réseaux. L'excitation de PS à partir d'un faisceau lumineux, permise par la structuration périodique du métal, est un moyen efficace pour collecter et concentrer l'énergie lumineuse à la surface du réseau, compensant ainsi la très faible transmission caractéristique des ouvertures sub-longueurs d'onde. Ainsi le rôle de la structure périodique s'apparente à celui d'une antenne. À ce sujet nous devons d'ailleurs préciser que tous les nœuds du réseau ne doivent pas nécessairement être des ouvertures débouchantes [82, 83]. En poussant ce raisonnement au bout on aboutit au concept de la cible [64, 83], illustré sur la figure 1.10. La symétrie cylindrique de cette configuration rend le processus de la transmission exaltée particulièrement efficace.



# Chapitre 2

## Fabrication et caractérisation des échantillons

### 2.1 Introduction

Nous trouverons dans ce chapitre tous les détails pratiques relatifs à la fabrication et à la caractérisation optique des réseaux de trous sub-longueurs d'onde.

### 2.2 Dépôt métallique par pulvérisation cathodique

La fabrication des échantillons débute par le nettoyage minutieux du substrat sur lequel une couche métallique sera déposée. Typiquement, les substrats sont en verre ou en quartz et sont nettoyés en utilisant une solution de nettoyage commerciale (Hellmanex II). Après un second nettoyage à l'alcool, les échantillons sont rincés dans différents bains d'eau distillée pour être finalement séchés dans une étuve.

Nous avons ensuite employé la technique de pulvérisation cathodique (en anglais « DC sputtering ») pour déposer une couche métallique de quelques centaines de nanomètres sur ces substrats. Ce procédé repose sur la génération d'un plasma, en l'occurrence par ionisation d'un gaz d'argon, dont les espèces ioniques sont fortement accélérées en direction d'une « cible » métallique. Cette dernière est placée à la verticale du substrat. De cette manière les atomes (neutres) de métal, pulvérisés de la cible sous l'effet des collisions avec les ions accélérés, diffusent dans l'enceinte à



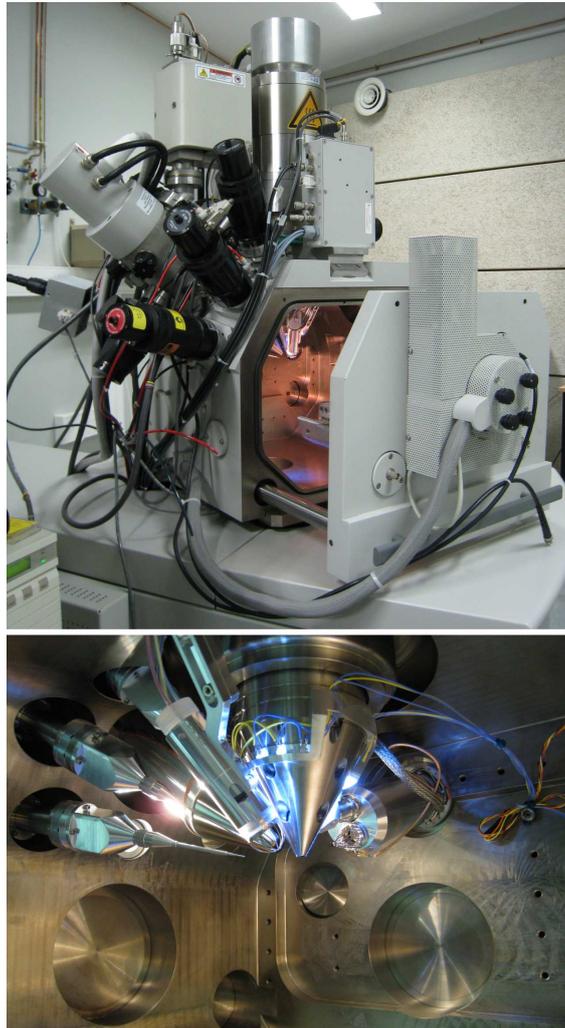
**Fig. 2.1** – Pulvérisateur Emitech K575X en cours d'utilisation. Nous pouvons distinguer clairement sous la cible le halo lumineux correspondant au plasma.

vide et se condensent majoritairement sur le substrat.

L'appareil que nous avons utilisé (Emitech modèle K575X, voir figure 2.1) est de plus équipé d'un système magnétron qui permet de concentrer efficacement le plasma sous la cible, favorisant le processus de déposition. Cette technique permet de travailler à des pressions plus faibles et d'obtenir des dépôts de meilleure qualité. Précisons également que la cible et le substrat sont tous deux refroidis par effet Peltier, ceci permet d'obtenir des films possédant un grain particulièrement fin. Ce dernier point est particulièrement critique lors de la gravure par lithographie à faisceau d'ions focalisés.

## 2.3 Gravure par lithographie à faisceau d'ions focalisés

Les différentes structures (réseaux de trous, trous uniques, ...) étudiées au cours de cette thèse ont été gravées dans des films métalliques par lithographie directe au moyen d'un système à faisceau d'ions focalisés. Cet instrument, plus connu sous son acronyme anglais FIB (pour « Focused Ion Beam »), a été originellement



**Fig. 2.2** – Chambre à échantillon de la station Strata dual beam 235. Nous pouvons y distinguer à la verticale la colonne SEM, et inclinée de  $52^\circ$  la colonne FIB. Les autres éléments visibles sont principalement des détecteurs et des injecteurs de gaz, que nous retrouvons également à l'intérieur de l'enceinte à vide. L'échantillon, porté par une platine mécanique 5 axes, est typiquement amené à 3 mm de l'extrémité de la colonne SEM. Sur ces photographies nous ne voyons toutefois qu'une partie de l'installation : le circuit de refroidissement, le système de pompage à vide et surtout l'électronique de contrôle remplissent une pièce complète.

développé pour répondre aux besoins de l'industrie micro-électronique en matière de caractérisation et de modification de circuits intégrés. La technologie FIB ressemble à celle du microscope électronique à balayage (MEB). Mais là où le MEB

utilise un faisceau d'électrons focalisés pour faire l'image d'un échantillon, le FIB utilise un faisceau d'ions focalisés, généralement des ions gallium. Les ions, extraits d'une source à métal liquide (LMIS, pour l'anglais « Liquid Metal Ion Source »), sont accélérés à une énergie aux alentours de 30 keV pour être ensuite focalisés par des lentilles électrostatiques. Du fait de leur masse élevée et de leur haute énergie, lorsque ces ions sont projetés sur un échantillon, ils pulvérisent les atomes de sa surface tout en s'y implantant. L'intensité de ce faisceau peut être contrôlée par l'utilisation de diaphragmes de différentes dimensions, ceci influant également sur l'étendue du faisceau. En contrôlant le déplacement de ce faisceau d'ions, il est ainsi possible de structurer la surface à l'échelle nanométrique.

Notons que le bombardement des ions lourds à la surface génère également des signaux (sous la formes d'électrons et d'ions) qui peuvent être mesurés à des fins d'analyse et d'imagerie. Mais à la différence la technique MEB non destructive, l'utilisation du FIB endommage irrémédiablement la surface.

Le système dont dispose le laboratoire est un système hybride, qui réunit dans la même enceinte à vide une colonne FIB et une colonne MEB. Il s'agit du modèle « Strata Dual Beam 235 » commercialisé par la compagnie FEI (voir figure 2.2). La réunion de ces deux technologie est très avantageuse, il possible notamment d'imager au MEB les structures réalisées au FIB sans les endommager.

La résolution de gravure est principalement déterminée par la taille du faisceau d'ions. Le diamètre nominal du faisceau est de 5 nm, mais dans la pratique, la résolution est limitée notamment par les caractéristiques de l'échantillon (rugosité, taille du grain, ...). Une autre contrainte provient également du contrôleur analogique numérique du système, celui-ci détermine en effet le plus petit déplacement possible applicable au faisceau. Cette caractéristique est toutefois uniquement limitante pour les structures les plus étendues.

Dans la pratique, la gravure par lithographie FIB revient à contrôler le déplacement du faisceau d'ion à la surface de l'échantillon. Une étape cruciale dans le processus de fabrication est donc le calcul des coordonnées des points composant le motif décrit par le faisceau ion. Bien que pour les structures les plus simples et les moins étendues cette étape de discrétisation est relativement aisée, des structures plus complexes et/ou plus étendues nécessitent la recherche d'un compromis entre différents paramètres limitant imposés par la machine : nombre maximal de coor-

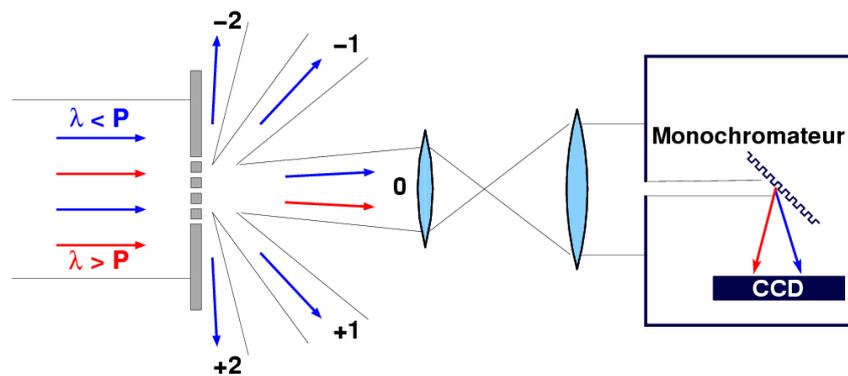
données ( $\approx 300000$  points), grossissement (résolution), taille et intensité du faisceau (paramètres dépendants) et temps de gravure. Cette étape de programmation est simplifiée par l'utilisation du logiciel livré avec la machine. Toutefois ce dernier reste très sommaire, seul une programmation rigoureuse permet de bénéficier pleinement des capacités de lithographie du FIB. Dans tous les cas, il est nécessaire de réaliser des essais pour ajuster de façon optimale les différents paramètres de gravure, c'est durant ces étapes d'ajustement que l'on apprécie tout particulièrement la présence d'une colonne MEB dans la même enceinte, permettant d'imager efficacement les différents essais préliminaires.

## 2.4 Caractérisation optique des structures

La caractérisation optique des échantillons repose sur la mesure de leurs spectres de transmission. Elle s'effectue par l'intermédiaire d'un microscope inversé Nikon (modèle Eclipse TE200) associé à un spectromètre Acton (modèle SpectraPro 300i) doté d'un détecteur à couplage de charge Princeton Instrument (modèle VersArray 1300B). Le principe de la mesure est schématisé sur la figure 2.3.

La structure étudiée est alignée sur l'axe optique du microscope et éclairée par un faisceau collimaté de lumière blanche (illumination critique). La lumière transmise est collectée par l'objectif du microscope et une image agrandie de la structure est formée sur la fente d'entrée du spectromètre. Le faisceau sélectionné est alors décomposé par diffraction sur un réseau puis refocalisé sur le détecteur. Notons que le réseau de diffraction peut être remplacé par un miroir, le détecteur servant alors à imager la structure. Les données obtenues sont finalement transférées sur un ordinateur qui interface l'expérience.

Précisons que pour les structures périodiques seul l'ordre zéro de diffraction est collecté. Les interférences dans le prolongement du faisceau incident sont constructives à toutes les longueurs d'onde, la forme du spectre de l'ordre zéro est de ce fait la même que celle de la transmission totale. Par contre, du fait que l'intensité des pics de transmission apparaissant à des longueurs d'onde plus petites que la période soit distribuée dans plusieurs ordres supérieurs, leur intensité est sous-estimée à la seule vue de l'ordre zéro de diffraction. Au cours de nos investigations nous nous intéresserons particulièrement au pic apparaissant à une longueur d'onde supérieure à la période (pic  $(1,0)$ ), présent uniquement dans l'ordre zéro de diffraction.



**Fig. 2.3** – Principe de la mesure des spectres de transmission des réseaux de trous.

# Chapitre 3

## Influence du métal dans le phénomène de transmission exaltée

### 3.1 Introduction

Aux vues des éléments énoncés dans le chapitre d'introduction, le phénomène de transmission exaltée dans les réseaux d'ouvertures sub-longueurs d'onde repose sur le couplage résonant de la lumière avec les plasmons de surface (PS). Une interaction efficace avec ces modes électromagnétiques piégés à la surface du métal est en effet rendue possible grâce à la diffraction de la lumière incidente par la structure périodique. Les propriétés de transmission des réseaux semblent dès lors essentiellement dominées par les paramètres géométriques des structures. Toutefois, les PS, en tant qu'oscillation collective d'électrons libres, ont des propriétés qui sont intimement liées à la réponse optique du métal. Pour cette raison, le métal est également un paramètre essentiel, influant sur le phénomène de transmission optique exaltée comme le soulignait déjà les premières études [47, 48].

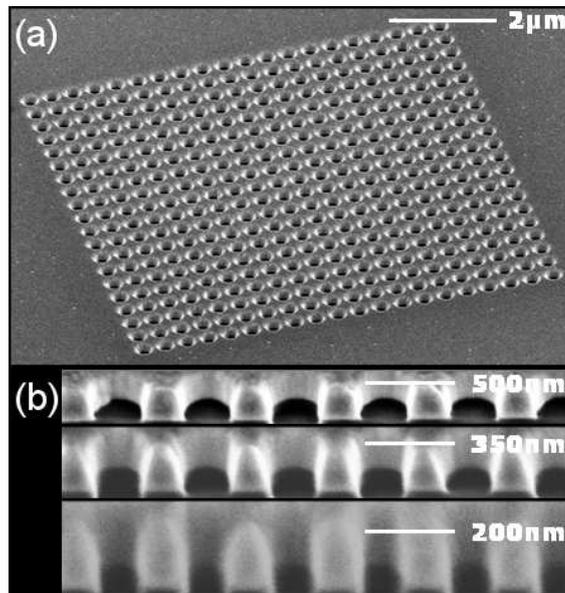
L'observation du phénomène de transmission exaltée a bien été reporté pour différents métaux [47, 48, 76, 81], toutefois une comparaison précise des résultats s'avère impossible en raison de la variation des conditions expérimentales. Isoler le rôle du métal dans le phénomène de transmission exaltée requière une étude qui lui

soit entièrement dédiée.

Cette investigation a également été motivée par le débat, concernant le mécanisme de la transmission exaltée, qui existait lorsque nous avons décidé d'entreprendre cette étude. En effet, certains auteurs calculaient [84] et observaient alors expérimentalement [85] des pics de transmission exaltée à travers des réseaux gravés dans le tungstène. Ce métal ne réunissant pas les conditions nécessaires à l'existence de mode PS dans le domaine spectral de leur étude (domaine du visible), les auteurs concluaient que l'existence et le couplage aux modes plasmoniques n'était pas une condition nécessaire à l'observation du phénomène de transmission exaltée.

Dans ce chapitre, nous nous proposons donc de présenter une étude systématique de l'influence du métal sur le phénomène de transmission exaltée. Pour cela, nous comparerons la transmission de réseaux de trous, ayant des paramètres géométriques identiques, gravés dans des métaux nobles : l'argent (Ag), l'or (Au) et le cuivre (Cu), et des métaux de transitions : le cobalt (Co), le nickel (Ni) et le tungstène (W). Une analyse de l'influence des constantes diélectriques du métal sur l'intensité de la transmission et sur la position des maxima et minima de transmission montrera qu'il existe une relation directe entre la transmission et la valeur de la partie réelle ( $\varepsilon'_m$ ) et imaginaire ( $\varepsilon''_m$ ) de la constante diélectrique  $\varepsilon_m$  du métal, la présence des transitions interbande, la présence de mécanismes de perte et l'excitation d'ondes de surface. Comme nous pouvons nous y attendre, les métaux qui possèdent les propriétés les plus favorables à l'existence de PS, c'est-à-dire faible absorption et forte densité d'électrons libres, donneront lieu aux plus grandes intensités de transmissions. Malgré que tous les réseaux métalliques possèdent des pics de transmission, nous pourrons distinguer des effets purement diffractifs comme dans le cas du W et des effets liés à l'excitation de modes de surface.

Enfin, nous noterons que, dans le cadre de cette étude comparative, nous nous sommes attachés à définir des conditions expérimentales fixes communes à toutes les structures, plutôt qu'à optimiser les réseaux afin d'atteindre le régime de transmission extraordinaire.



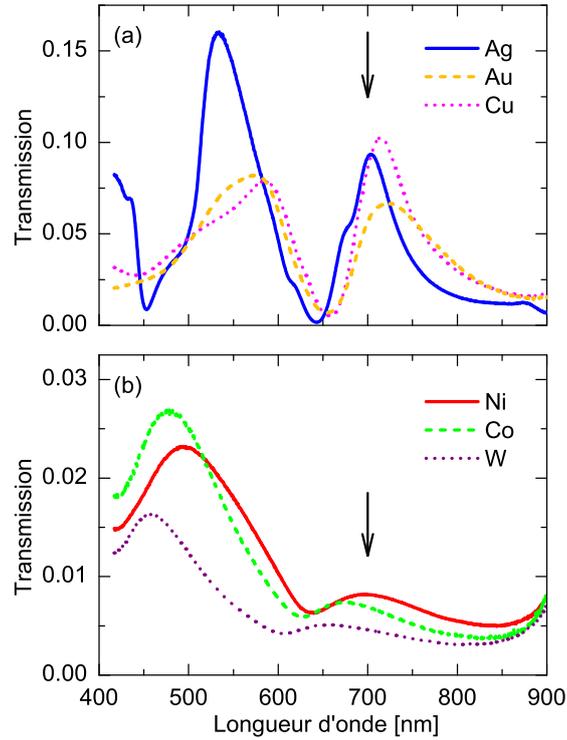
**Fig. 3.1** – (a) Vue par microscopie électronique à balayage (MEB) d'un réseau de trous de période  $p = 500$  nm gravé dans un film de 250 nm d'Ag. (b) Coupes longitudinales effectuées dans des réseaux de périodes  $p = 500, 350$  et 200 nm, ayant le rapport période  $p$  sur diamètre  $d$  constant ( $p/d = 1.75$ ). Les images MEB ayant été acquises pour une inclinaison de  $52^\circ$  des structures, il est nécessaire de tenir compte d'un facteur correctif pour les dimensions verticales.

## 3.2 Protocole expérimental

Pour cette étude, nous avons gravé des séries de réseaux d'ouvertures sub-longueurs d'onde à travers des films métalliques de 250 nm d'épaisseur qui avaient été préalablement pulvérisés sur des substrats en verre. Ces structures consistent en des réseaux à maille carrée de  $20 \times 20$  trous\*, ayant une période  $p$  variant de 200 à 500 nm et un diamètre d'ouverture  $d$  variant en proportion, suivant le rapport  $d = p/1.75$ . La figure 3.1(a) présente un exemple de nano-structure obtenue par gravure FIB.

Tel qu'il a été décrit dans la section 1.4 le spectre de transmission de ce type de réseau contient deux séries de pics correspondant à l'excitation de modes PS

\*En ce qui concerne les effets de taille finie soulevés dans le chapitre 4, notons que dans les conditions expérimentales de cette étude (réseaux dans un configuration asymétrique verre-métal-air, diamètre des ouvertures relativement grands par rapport à la période), toutes les structures se trouvent a priori dans le régime de saturation présenté dans le chapitre 4.



**Fig. 3.2** – Spectres de transmission de réseaux de trous ( $p = 400$  nm et  $d = 230$  nm) gravés dans des métaux nobles **(a)** et des métaux de transitions **(b)**. Le pic de transmission (1,0) qui est étudié est celui situé aux plus grandes longueurs d’onde, indiqué par une flèche.

aux deux interfaces du système : l’interface métal-air et l’interface métal-verre. La figure 3.2 présente les spectres de transmission typiques de réseaux gravés dans les différents métaux sélectionnés pour cette étude. Une flèche y indique le pic de plus faible énergie, correspondant au mode (1,0) de l’interface métal-verre. Celui-ci étant toujours spectralement isolé, il est facilement analysable et convient donc tout particulièrement à une étude systématique. Dans la suite nous nous concentrerons donc exclusivement sur le mode (1,0) de l’interface métal-verre.

En plus d’avoir simplement gravé une structure similaire dans différents métaux, rendant déjà possible une comparaison inter-métaux, nous avons gravé une série de réseaux de période croissante dans chaque métal. Une variation de la période modifie en effet la condition de couplage aux PS, ce principe permet en particulier de déplacer la résonance (1,0) sur une large gamme spectrale (voir section 1.4). En suivant alors systématiquement le pic (1,0) pour différentes périodes, il devient

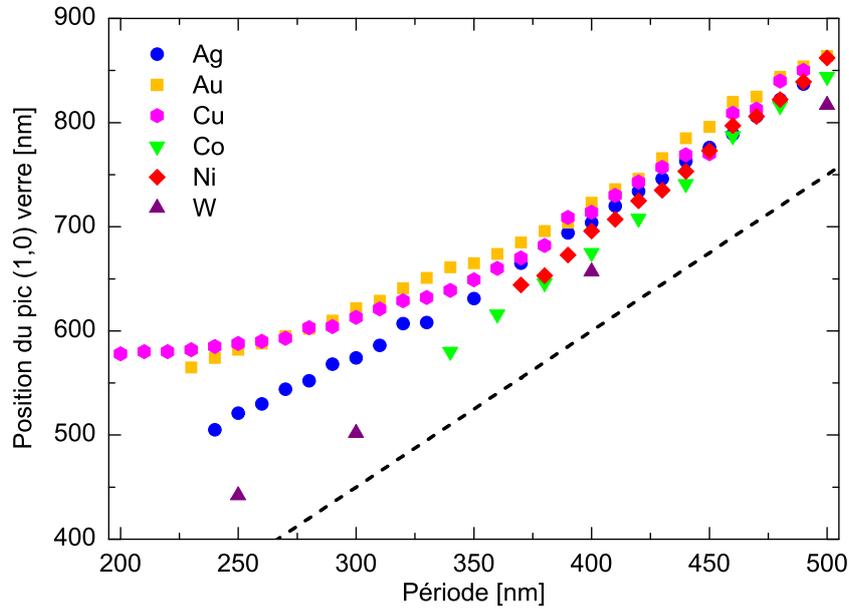
possible de sonder l'effet de la variation de la réponse optique d'un métal avec la longueur d'onde sur la transmission exaltée.

Nous avons ainsi caractérisé systématiquement la transmission optique de ces séries de réseaux préparées dans différents films métalliques, puis nous en avons extrait la position, l'intensité et la largeur associés au pic  $(1, 0)$  métal-verre. Ces données présentées dans les figures 3.3, 3.6 et 3.9 seront discutées en détail dans les prochaines sections.

Afin d'interpréter clairement les résultats des mesures il est nécessaire de détailler un certain nombre de paramètres. Tout d'abord, le rapport  $p/d$  étant constant, tous les réseaux ont le même profil comme le montrent les coupes longitudinales de réseaux présentées figure 3.1(b). D'autre part, il est important de noter que dans cette configuration dite « asymétrique » (substrat d'un côté du film et air de l'autre côté) le couplage des PS des deux interfaces via les trous du réseau peut être considéré comme négligeable, les modes  $(1, 0)$  des deux interfaces étant suffisamment séparés spectralement contrairement aux mesures présentées dans la référence [60].

### 3.3 Position du pic de transmission

Pour commencer intéressons nous à la position du maxima de transmission en fonction de la période du réseau. La figure 3.3 offre un résumé des mesures réalisées. Comme nous pouvons le constater la position du pic se déplace vers les courtes longueurs d'onde lorsque  $p$  diminue. Cette observation est exactement ce que nous attendions. En effet, dans la relation 1.10 qui décrit le couplage entre la lumière et les PS sur une structure périodique,  $p$  détermine l'impulsion manquante ( $\mathbf{G}$ ) à l'onde incidente pour coupler aux modes PS. Dans le cas de la résonance  $(1, 0)$  d'un réseau à maille carrée éclairé sous incidence normale, cette condition de phase se réduit à  $\|\mathbf{k}_{\text{PS}}\| = 2\pi/p$ , où  $\mathbf{k}_{\text{PS}}$  est le vecteur d'onde correspondant aux modes PS  $(1, 0)$ . D'après la relation de dispersion des PS (voir figure 1.3), nous pouvons donc nous attendre à ce que la résonance suive la ligne de la lumière aux grandes longueurs d'onde, c'est-à-dire aux grandes périodes. Toutes les courbes expérimentales de la figure 3.3 approchent effectivement une asymptote oblique aux grandes périodes. Néanmoins nous remarquons que cette asymptote, qui correspond à la dispersion de la résonance, se trouve décalée d'environ 10% par rapport à la relation de dispersion de la lumière (déterminée par l'indice de réfraction du substrat). Ceci montre

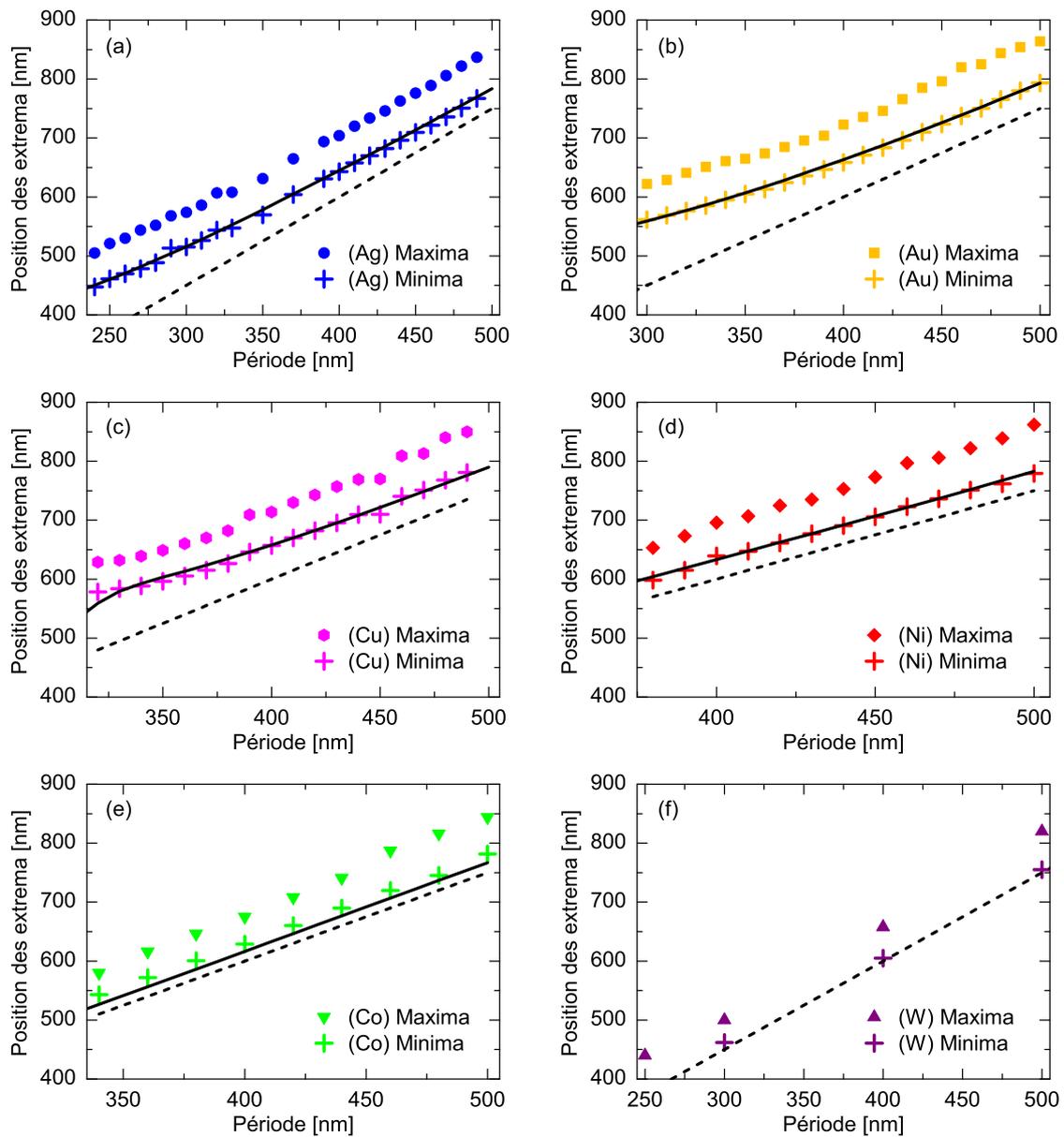


**Fig. 3.3** – Position du pic (1,0) métal-verre en fonction de la période du réseau pour les différents métaux étudiés. La ligne discontinue représente le cône de lumière dans un substrat de verre ( $n = 1.5$ ).

que la simple relation de couplage des PS ne permet pas de décrire complètement la dynamique de transmission d'un réseau d'ouvertures sub-longueurs d'onde. Ce processus complexe peut néanmoins être interprété par un modèle de type Fano (voir section 1.4). Selon cette interprétation, le maximum de transmission est décalé vers le rouge et c'est plutôt le minima (qui résulte d'une interférence destructive et apparaît juste avant le maxima) qui doit être décrit par la relation précédente.

Afin de s'en assurer, nous avons comparé la position du maxima et du minima correspondant à la résonance (1,0) métal-verre à la ligne de la lumière ainsi qu'à la relation de couplage des PS sur le réseau. Ces données sont présentées dans les figures 3.4(a), (b), (c), (d) et (e) pour respectivement le cas de l'Ag, Au, Cu, Ni et Co. Ces représentations montrent clairement que les minima (croix) qui suivent la relation de dispersion des PS (lignes discontinues), mais que dans la gamme spectrale de cette étude, ils n'ont pas encore totalement convergé vers la ligne de la lumière.

Penchons nous à présent sur le comportement de ces courbes expérimentales aux



**Fig. 3.4** – Position du maximum (symbole géométrique) et du minimum (croix) de transmission correspondant au mode (1,0) de l'interface métal-verre en fonction de la période du réseau pour les différents métaux étudiés. La position de ces extrema est comparée à la ligne de la lumière (ligne discontinue) et à la relation de dispersion des plasmons de surface (ligne continue) sur une interface plane métal-verre.

courtes périodes. On observe dans la figure 3.3 que lorsque la période diminue les courbes des métaux nobles divergent vers des asymptotes horizontales définies par les propriétés optiques particulières de ces métaux.

Dans le cas du Cu, la position du pic atteint une valeur limite qui correspond au début des transitions interbandes. Celles-ci sont en effet localisées à environ 575 nm, et sont d'ailleurs caractérisées par une augmentation brutale de  $\varepsilon''_m$  que nous retrouvons sur la figure 3.7. Remarquons d'ailleurs que cette limite apparaît bien plus tôt que la condition limite d'existence des PS aux longueurs d'onde  $\lambda \approx 365$  nm (définie par  $\varepsilon'_m \approx -\varepsilon_d$ , avec dans notre cas  $\varepsilon_d = 2.25$  pour un substrat de verre).

En ce qui concerne l'Au, la position de la résonance dévie également de la linéarité en approchant les transitions interbandes, situées à environ 510 nm, proches de la limite d'existence des PS pour ce métal ( $\lambda \approx 490$  nm).

Dans le cas de l'Ag, la divergence est beaucoup plus petite car la condition limite d'existence des PS ( $\lambda \approx 360$  nm) n'est pas perturbée par des transitions interbandes dans la gamme spectrale étudiée. Pour l'Ag les transitions interbandes se localisent en effet dans le domaine des ultraviolets aux alentours de 315 nm.

Dans le cas du Ni et du Co, les mesures aux courtes périodes ont malheureusement révélé un manque de résolution qui nous a empêché d'extraire des données précises sur les pics de transmission.

Étonnamment les valeurs obtenues dans le cas du W suivent linéairement la période. Comme nous l'expliquerons dans la suite, cette observation nous donne une indication clé quant à la nature du processus impliqué dans la transmission en ce qui concerne ce métal.

Comme nous venons de le voir, dans le visible, la réponse spectrale de réseaux de trous gravés dans de l'Au et du Cu est influencée par la présence de transitions interbandes, responsables de leur coloration caractéristique. Nous avons voulu examiner plus en détail l'influence de ces propriétés particulières de l'Au et du Cu en réalisant une étude complémentaire.

Pour cela, nous avons mesuré la relation de dispersion de réseaux gravés dans ces métaux. Cette analyse consiste à mesurer systématiquement les spectres de transmission en lumière polarisée des structures en fonction de l'angle de la lumière incidente. L'angle sous lequel est éclairé l'échantillon détermine en effet la projection du vecteur d'onde incident sur la surface ( $\mathbf{k}_{0//}$ ), et, de ce fait les modes PS excités,

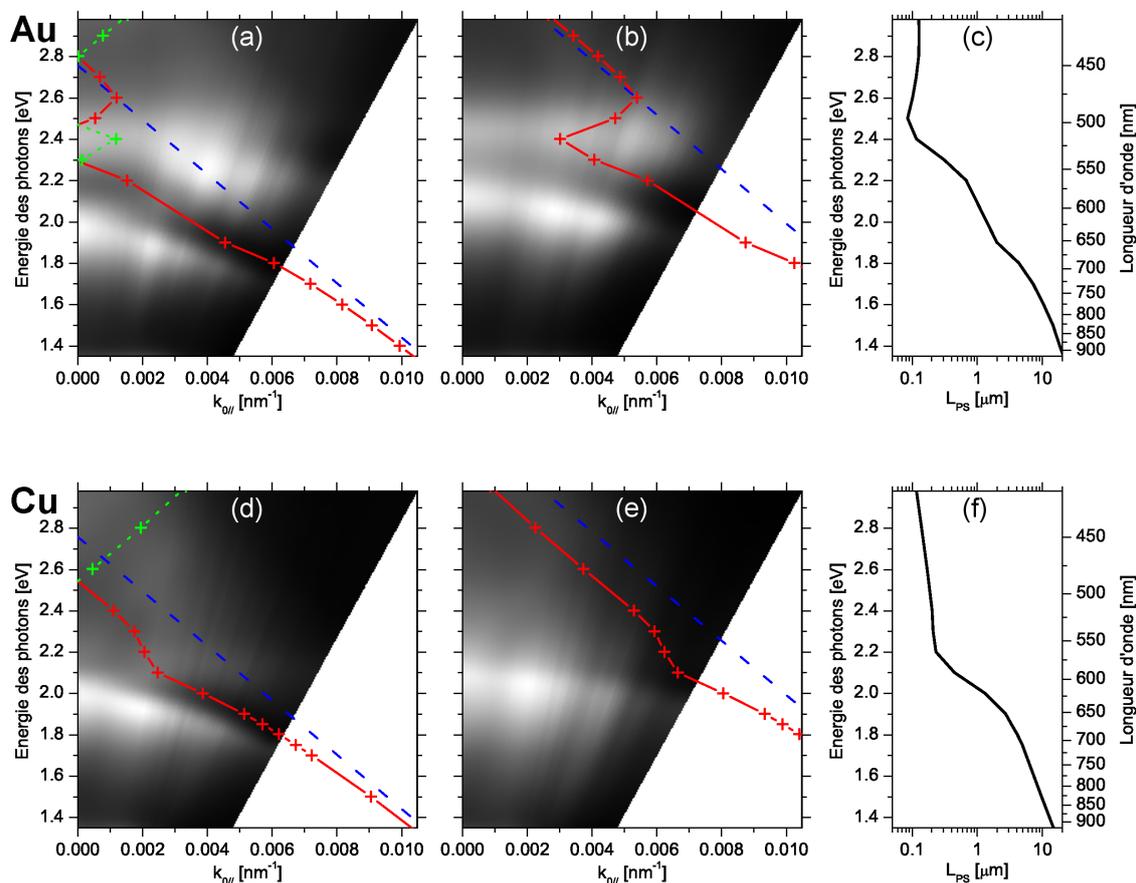
en accord avec les lois de conservation du moment et de l'énergie (voir relation 1.10).

La figure 3.5 présente les relations de dispersions obtenues pour des réseaux de périodes  $p = 300$  nm et  $p = 250$  nm gravés dans de l'au et du Cu. Dans le cas présent la direction de polarisation de l'onde incidente coïncide avec un axe principal du réseau et a été choisie orthogonale à l'axe de rotation de la structure. Sur ces données, nous avons également reproduit la relation de dispersion des PS sur une interface plane métal-verre ainsi que la ligne de la lumière.

On retrouve sur la figure 3.5(a), le long de l'axe des ordonnées ( $k_{0//} = 0$  nm<sup>-1</sup>), le spectre de transmission mesuré à incidence normale d'un réseau d'au de période  $p = 300$  nm. En accord avec les données présentées précédemment (figure 3.3), ce spectre est caractérisé par un maximum de transmission à environ 2 eV ( $\approx 600$  nm) associé aux modes (1, 0). Lorsque que l'angle d'incidence augmente, les modes (-1, 0) et (+1, 0), qui étaient dégénérés à incidence normale, se déplacent le long de deux « branches », allant respectivement vers les plus petites énergies et les plus grandes énergies. La figure 3.5(a) permet de suivre aisément le mode (-1, 0) qui se rapproche de la ligne de la lumière aux grandes longueurs d'onde. L'évolution du mode (+1, 0) est quant à elle plus difficile à repérer car elle est d'une part partiellement masquée par le minima associé au mode (-1, 0); et d'autre part elle s'approche aux plus hautes énergies de la bande de transparence de l'au visible à environ 2.45 eV ainsi que de la condition limite d'existence des PS. La seule indication qui persiste est une sur-intensité mesurée à environ 2.2 eV. Le repliement des courbes de dispersion calculées est directement lié à la forte variation des indices optiques au voisinage des transitions interbandes.

Les données relatives au réseau de plus petite période gravé dans l'au (figure 3.5(b)) montrent à nouveau que la courbe de dispersion relative au mode (-1, 0) verre s'infléchit nettement près de l'origine s'éloignant de la ligne de la lumière, en accord avec les observations précédentes. Cette représentation permet de distinguer clairement la transmission associée à la résonance PS de celle associée aux transitions interbandes. Bien que ces mesures semblent indiquer que les transitions interbandes fixent une limite aux résonances PS, n'oublions pas que dans le cas de l'au la condition limite d'existence des PS, est localisée près des interbandes, ce qui ne nous permet pas de discriminer entre ces deux effets.

Sur ce point le Cu se révèle avoir des propriétés intéressantes, puisque comme



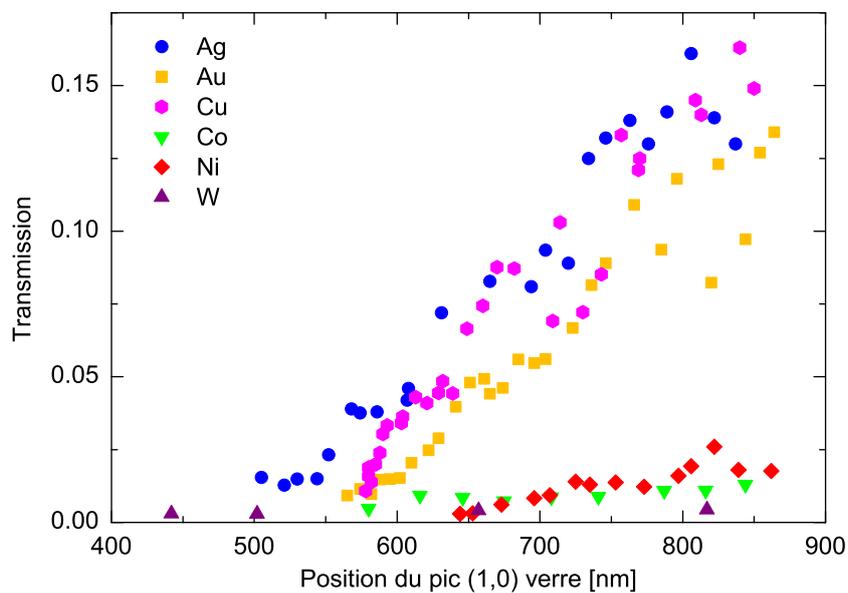
**Fig. 3.5** – (a) et (b) Courbes de dispersion angulaire de réseaux gravés dans un film d’Au (respectivement  $p = 300$  nm et  $p = 250$  nm). La transmission des réseaux est représentée en niveaux de gris (échelle linéaire). (c) Longueur de propagation des plasmons de surface sur une interface plane Au-verre en fonction de la longueur d’onde, évaluée à partir des données optiques de l’Au. (d), (e) et (f) Données correspondantes pour des réseaux en Cu. Nous avons superposé aux relations de dispersion des réseaux la ligne de la lumière (ligne bleu discontinue) et la relation de dispersion des plasmons de surface sur une interface plane métal-verre, calculée pour le mode  $(-1, 0)$  (ligne rouge continue) et le mode  $(+1, 0)$  (ligne verte en pointillés) de l’interface métal verre.

nous l'avons énoncé précédemment la condition limite d'existence des PS est beaucoup plus espacée en énergie des transitions interbandes. La figure 3.5(c) permet de suivre l'évolution du mode  $(-1, 0)$ . Bien que l'évolution de ce mode suive la relation de dispersion calculée aux grandes longueurs d'onde (grands  $k_{0//}$ ), nous constatons que sa progression semble être limitée par la résonance associée aux transitions interbandes localisée à environ 2.15 eV. À partir de cette limite, la simple évaluation de la relation de dispersion des PS sur une interface plane ne permet plus de décrire précisément les observations expérimentales. Cette observation est encore plus marquée pour le réseau de plus petite période (figure 3.5(d)), nous pouvons en effet remarquer que la résonance PS reste confondue avec le pic de transparence du Cu. Le mode  $(-1, 0)$  ne disperse presque pas, montrant qu'au voisinage des transitions interbandes les résonances sont de plus en plus localisées. Ceci est en parfait accord avec la chute, de plus d'un ordre de grandeur, de la longueur de propagation des PS dans cette limite (voir figure 3.5(c) et (f)).

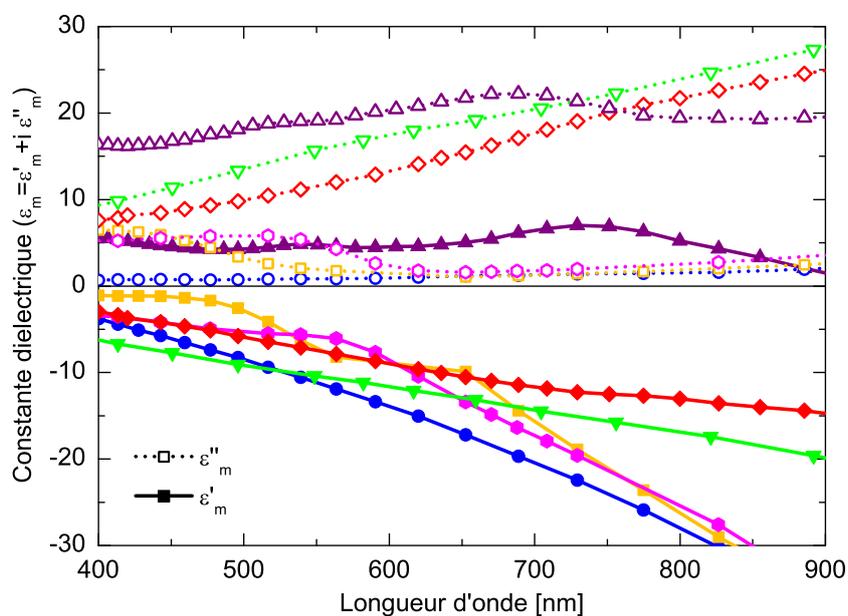
La forte absorption liée aux transitions interbandes dans les métaux nobles réduit sérieusement la propagation des PS dans ce domaine et semble être responsable de l'évolution non linéaire de la position des pics lorsque la période diminue. Ces observations expérimentales [86] sont confirmées par plusieurs études théoriques [87, 88]. Dans une des études [87], une modélisation de la réponse spectrale de métaux nobles permet de relier clairement le comportement non linéaire de la position du pic au voisinage des interbandes au rôle prépondérant des électrons de cœur (associés aux transitions interbandes) dans cette même gamme spectrale. Cette étude statique a d'ailleurs récemment été transposée au cas dynamique dans le cas de réseau en Au [89], soulignant à nouveau le rôle clé des électrons cœur au voisinage des transitions interbandes dont il faut nécessairement tenir compte pour modéliser correctement la dynamique des PS et de ce fait également la réponse optique des réseaux de trous sub-longueurs d'onde.

### 3.4 Intensités de transmission

À présent comparons les intensités de transmission mesurées à travers les séries de structures gravées dans les différents métaux. Ces données, présentées dans la figure 3.6, mettent immédiatement en évidence une importante disparité entre la



**Fig. 3.6** – Intensités transmises en fonction de la position du pic (1,0) métal-verre.



**Fig. 3.7** – Constantes diélectriques des différents métaux étudiés (partie réelle et partie imaginaire) extraites de [35]. La légende utilise la même nomenclature que celle définie dans les figures 3.3 et 3.6.

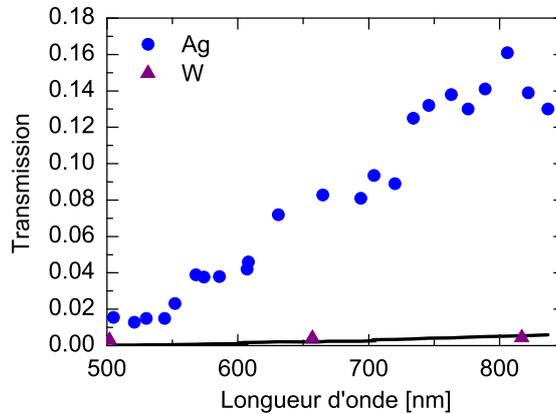
famille des métaux nobles et celle des métaux de transition. Cette différence, ainsi que la chute de transmission en direction des courtes périodes, semblent à première vue s'expliquer par les valeurs tabulées des parties réelles ( $\varepsilon'_m$ ) et imaginaires ( $\varepsilon''_m$ ) des constantes diélectriques des métaux présentés dans la figure 3.7. En effet, cette figure permet immédiatement de répartir les métaux étudiés en trois catégories :

- Les métaux nobles (Ag, Au et Cu), caractérisés par une faible absorption (faible valeur de  $\varepsilon''_m$ ) et une forte densité d'électrons libres (valeur absolue de  $\varepsilon'_m$  élevée) dans le domaine du visible.
- Le Co et le Ni, métaux dits de transition, caractérisés par une forte absorption et une densité d'électron libre globalement plus faible que les métaux nobles.
- Le W, également métal de transition, fait ici figure à part puisque dans le visible la partie réelle de sa constante diélectrique est positive, caractéristique des matériaux diélectriques qui ne peuvent pas soutenir de mode PS.

De plus lorsque la période diminue, les pics de transmission se déplacent vers les courtes longueurs d'onde et voient leur intensité chuter. Cette tendance semble à priori s'expliquer par la diminution en parallèle des valeurs absolues des  $\varepsilon'_m$ . La réalité est toutefois plus complexe, car toutes les courbes présentées dans la figure 3.6 sont également modulées par la fonction d'atténuation des trous individuels. Par analogie avec la théorie des guides d'onde, on peut définir cette fonction d'atténuation comme étant l'efficacité de transmission  $\eta$  d'un guide d'onde, de longueur  $h$  et de section circulaire de diamètre  $d$ , illuminé sous sa fréquence de coupure [90] :

$$\eta(\lambda, h, d) = \exp(-2\alpha h) \quad \text{avec} \quad \alpha \approx \Im \left( \sqrt{\left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^2 - \left(\frac{3.68}{d}\right)^2} \right) \quad (3.1)$$

Comme nous l'avons décrit précédemment, le rapport entre la position du pic et la période ( $\lambda/p$ ) est essentiellement constant aux longueurs d'onde supérieures à 600 nm. Le rapport  $p/d$  étant fixé, c'est donc également le rapport  $\lambda/d$  qui est constant. Dans ce cas, d'après la relation 3.1,  $\alpha$  diminue lorsque  $\lambda$  augmente. En d'autres termes, l'atténuation diminue lorsque  $\lambda$  augmente. Par conséquent l'efficacité de transmission du guide d'onde augmente lorsque la position du pic se déplace vers



**Fig. 3.8** – Comparaison entre les transmissions mesurées aux travers des réseaux gravés dans un film d'Ag (cercles) et un film de W (triangles) avec le calcul de la transmission d'un guide d'onde circulaire (ligne continue). Pour tenir compte de l'épaisseur de peau du métal les ouvertures ont été élargies de 30 nm.

les grandes longueurs d'onde.

Cette atténuation est modulée par le diamètre effectif de l'ouverture, qui est plus grand que le diamètre nominal de l'ouverture du fait de la pénétration des ondes dans un métal réel. Cette épaisseur de peau dépend des propriétés diélectriques du métal, augmentant typiquement avec la partie imaginaire de sa constante diélectrique (qui dans le cas présent augmente avec la longueur d'onde). Bien que non négligeable, ce facteur est globalement constant dans la gamme spectrale étudiée ne contribuant de ce fait pas à l'augmentation de la transmission vers les grandes longueurs d'onde (la variation du diamètre de l'ouverture avec la période et donc la longueur d'onde du pic domine largement).

La multiplication de cette fonction d'atténuation par le facteur de remplissage des réseaux (rapport entre l'aire totale occupée par les trous et la surface du réseau) permet d'effectuer directement une comparaison avec les résultats de la figure 3.6. Dans le cas de l'Ag, cette équation sous estime totalement la transmission, comme nous pouvons le voir sur la figure 3.8. Et cela même en tenant compte de l'épaisseur de peau du métal.

Ces comparaisons indiquent que l'apparente linéarité des données de la figure 3.6 est sans doute le produit à la fois d'une variation des propriétés diélectriques du

métal et d'une atténuation de type guide d'onde. Néanmoins seul un calcul rigoureux, tenant compte précisément de la contribution de la densité de champ, de la dynamique de diffusion sur le réseau métallique, de l'atténuation dans les trous, et les constantes diélectriques du métal permet une comparaison complètement quantitative avec les données expérimentales des différents métaux. Dans ce contexte, une approche théorique a été menée récemment [88]. Ces travaux arrivent à reproduire avec un très bon accord les résultats expérimentaux présentés au cours de ce chapitre [86]. Cette étude souligne l'influence complexe des propriétés optiques du métal dans le phénomène de transmission optique exaltée, qui peuvent affecter différemment les étapes successives du processus de transmission. Par exemple, dans une certaine mesure une augmentation de la partie imaginaire de la constante diélectrique peut concourir d'un côté à réduire la transmission du fait de l'augmentation de l'absorption du métal, et d'un autre côté à augmenter la transmission du fait de la meilleure pénétration du champ dans le métal qui élargit le diamètre effectif des ouvertures. Ainsi ces calculs montrent que la transmission à travers des métaux nobles peut excéder celle d'un métal parfait (caractérisé par une absorption nulle). Les réseaux d'aluminium, également étudiés théoriquement, possèdent d'ailleurs des propriétés optiques proches de celles de réseaux en métal parfait, sauf dans le régime des grandes longueurs d'onde où l'absorption de l'aluminium augmente rapidement réduisant la transmission des structures, alors proche de celle calculée pour les métaux de transition [88].

Soulignons également que, comme le montrait l'une des premières études [81], le phénomène de transmission exaltée est sensible uniquement aux propriétés optiques du métal à la surface de la structure, sur une profondeur de quelques épaisseurs de peau. Ainsi la transmission d'un réseau fabriqué dans un « mauvais métal » peut être simplement amplifiée en recouvrant la structure par une fine couche de métal moins absorbant.

L'influence des constantes diélectriques du métal dans le phénomène de transmission exalté a été vérifié dans de nombreuses gammes de longueur d'onde : les ultraviolets [91,92], le visible [81,86], les infra-rouges proches [93,94], les infra-rouges lointains [95–98] et les micro-ondes [99]. Dans leur grande majorité, ces études soulignent l'influence du rapport ( $\varepsilon'_m/\varepsilon''_m$ ) sur l'intensité de transmission des réseaux de trous mais ne rentrent pas dans les détails et la compréhension que permet notre étude et les calculs théoriques correspondants [86,88].

### 3.5 Le tungstène : un cas particulier

Ainsi que nous l'avons introduit précédemment le W se démarque des autres métaux étudiés de part sa  $\varepsilon'_m$  positive qui reflète son caractère non métallique, interdisant la propagation de mode PS à sa surface aux fréquences optiques. Les intensités de transmission mesurées aux travers des réseaux de W figurent en effet parmi les plus faibles de toute celle mesurées et ne varient pas beaucoup en fonction de la période (et de la longueur d'onde) en accord avec les données présentées figure 3.7. La comparaison des transmissions expérimentales avec le modèle de type guide d'onde (voir figure 3.8) révèle que dans le cas du W le processus de transmission est totalement dominé par l'atténuation aux travers des ouvertures.

Par ailleurs, les courbes de dispersion des réseaux de W montrent une dépendance similaire aux anomalies de Wood, phénomène purement diffractif. Cette observation peut être confirmée en comparant les maxima et minima des spectres de transmission du W avec la ligne de lumière dans un substrat de verre. En effet, comme on peut le voir sur la figure 3.4(f) les minima tombent parfaitement sur la ligne de lumière, comme on peut s'y attendre pour un phénomène purement diffractif, contrairement aux cas des autres métaux présentés dans la figure 3.4 pour lesquels les minima suivent la relation de dispersion des PS.

La position des minima est un très bon indicateur du type de mode impliqué dans le processus de transmission, ainsi qu'il déjà été rapporté dans la littérature [62, 63]. Une autre possibilité pour différencier un phénomène purement diffractif de l'implication d'ondes de surface serait de vérifier si le réseau dépolarise une fraction de la lumière transmise [56, 100].

### 3.6 Largeur des résonances

Nous allons maintenant concentrer notre attention sur la largeur des pics de transmission qui est une mesure du temps de vie des PS. Bien qu'en réalité il soit nécessaire de distinguer une contribution homogène et une contribution inhomogène à la largeur d'une résonance, la variation de la largeur du pic avec la longueur d'onde (malgré une qualité de gravure similaire des structures) indique que la largeur inhomogène, reflétant les imperfections de la structure, est d'importance mineure. Dans la suite, nous supposons que la largeur totale de la résonance est simplement

homogène, correspondant au temps de vie de la résonance [44].

Nous avons suivi l'évolution de la largeur du pic (1,0) en fonction de sa position, autrement dit en suivant les courbes de la figure 3.3. Les métaux de transition étant hautement dissipatifs, leur pics sont trop larges pour être déterminés précisément, nous nous concentrerons donc sur les métaux nobles comme le montre la figure 3.9. Malgré les fluctuations, les mesures permettent de distinguer clairement deux régimes.

Aux grandes longueurs d'onde, les largeurs à mi-hauteur ( $\Gamma_{TOT}$ ) sont plus fines, s'élargissant sensiblement en approchant le proche infra-rouge. Ce régime correspond à la zone de la figure 3.3 où les pics se déplacent linéairement avec la période et où la radiation des PS domine.

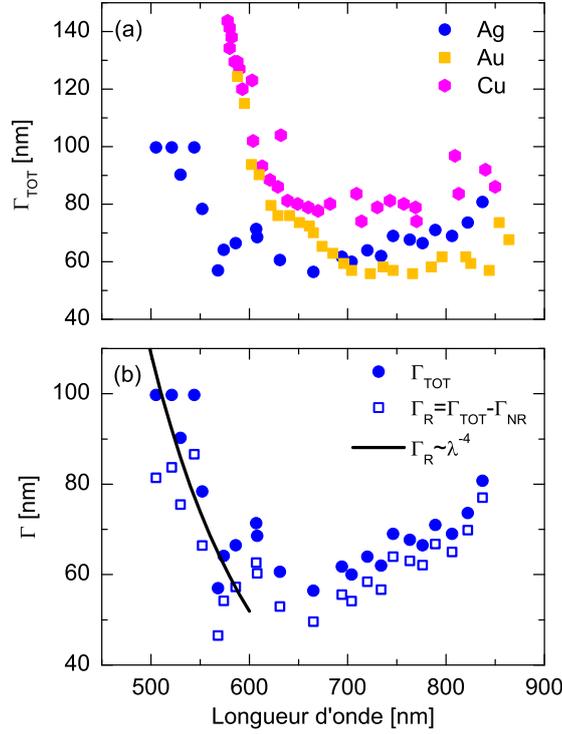
Aux courtes longueurs d'onde, l'augmentation des largeurs est concomitante à la divergence des positions des pics par rapport à l'asymptote oblique (observée dans la figure 3.3).

Il est important de noter que, dans le cas de Au et Cu, les largeurs mesurées sont sous estimées. Ceci est du à la proximité des transitions interbande et de leurs pics de transmission associés. Pour cette raison, seules les données de l'Ag permettent d'effectuer une analyse détaillée.

Nous avons calculé la contribution non radiative ( $\Gamma_{NR}$ ) liée à  $\Gamma_{TOT}$  pour les pics de l'Ag, en considérant une décroissance exponentielle des PS sur une interface plane Ag-verre. En supposant qu'une résonance PS puisse être modélisée comme une résonance harmonique amortie, nous pouvons relier la largeur spectrale de la résonance ( $\Gamma$ ) à son temps de vie ( $\tau_{PS}$ ) par la relation  $\Gamma(\omega) \cdot \tau_{PS} = 1$ . Connaissant la relation de dispersion des PS, nous pouvons évaluer (à partir de la vitesse de groupe) le temps de vie des PS sur une interface plane en ne considérant que l'absorption dans le métal. La largeur correspondant à ce temps de vie constitue alors la contribution non radiative à la largeur de la résonance :

$$\Gamma_{NR} = 2\lambda \frac{\Im \left( \sqrt{\frac{\varepsilon_{Ag}\varepsilon_d}{\varepsilon_{Ag} + \varepsilon_d}} \right)}{\Re \left( \sqrt{\frac{\varepsilon_{Ag}\varepsilon_d}{\varepsilon_{Ag} + \varepsilon_d}} \right)}. \quad (3.2)$$

Dans cette relation,  $\varepsilon_{Ag}$  et  $\varepsilon_d$  sont respectivement les constantes diélectriques de l'Ag et du substrat. Avec une telle hypothèse  $\Gamma_{TOT} = \Gamma_{NR} + \Gamma_R$ , on peut donc



**Fig. 3.9** – (a) Largeurs à mi-hauteur ( $\Gamma_{TOT}$ ) des pics de transmission du mode (1, 0) de l’interface métal-verre pour les réseaux gravés dans les métaux nobles. (b) Comparaison entre  $\Gamma_{TOT}$  et la contribution radiative ( $\Gamma_R$ ) pour le cas des réseaux gravés dans l’Ag.

soustraire aux données présentées dans la figure 3.9(a) les valeurs calculées de  $\Gamma_{NR}$  afin d’obtenir la largeur radiative ( $\Gamma_R$ ) sur toute la gamme spectrale. Comme nous pouvons le voir sur la figure 3.9(b) la faible correction apportée par  $\Gamma_{NR}$  confirme que la diffusion radiative domine totalement la largeur des pics et de ce fait la valeur du temps de vie des PS. Dans le cas de Au et Cu, on peut noter que la contribution non radiative sur la largeur totale va toutefois devenir significative aux courtes longueurs d’onde du fait de l’augmentation de la dissipation (voir figure 3.7).

En ce qui concerne l’Ag,  $\Gamma_R$  continue d’augmenter fortement aux courtes longueurs d’onde malgré la soustraction de la contribution non radiative qui augmente également dans cette direction. Dans ce régime le ratio entre la position du pic et la période diverge (figure 3.3), la position du pic devenant plus grande que deux fois la période. Par conséquent, puisque le rapport  $p/d$  est constant et largement supérieur à l’unité, la longueur d’onde des PS devient très grande par rapport au

diamètre des ouvertures. De ce fait, les PS devraient subir un mode de diffusion de type Rayleigh en se propageant à la surface du réseau. Comme on peut le voir sur la figure 3.9(b), un fit des données expérimentales révèle que la pente suit effectivement une dépendance proche de  $\lambda^{-4}$ . Cette dépendance standard attendue pour une diffusion 2D de type Rayleigh a d'ailleurs déjà été observée sur des réseaux de trous [44, 101].

Vers les grandes longueurs d'onde, le rapport entre le diamètre des ouvertures et la position du pic augmente, devenant presque constant lorsque la position du pic évolue linéairement avec la période. La légère augmentation de la largeur du pic que nous pouvons observer dans cette direction est probablement liée au fait que le PS devient de plus en plus radiatif lorsque sa longueur de propagation augmente avec la longueur d'onde.

### 3.7 Conclusion

Les résultats obtenus au cours de cette étude nous permettent d'émettre un certain nombre de commentaires concernant la transmission des réseaux d'ouvertures sub-longueurs d'onde. Alors que les propriétés optiques des métaux jouent un rôle prépondérant dans le phénomène, il faut également considérer un certain nombre de subtilités. Lorsque tout les paramètres sont constants, les métaux nobles donnent lieu aux transmissions les plus importantes, augmentant vers les grandes longueurs d'onde. Ceci résulte de l'augmentation de la valeur absolue de  $\varepsilon'_m$  qui se traduit par une augmentation de l'intensité du champ évanescent produit par les PS à l'interface métallique (comme nous le verrons dans le chapitre 4 nous pouvons en effet relier une augmentation de la longueur de propagation des PS à la surface d'un réseau de trous à une augmentation de l'efficacité du phénomène de transmission exaltée). Les propriétés optiques des métaux de transition sont telles que la transmission est très faible, qu'ils permettent ou non l'existence de mode PS, comme dans le cas du W. En ce qui concerne le Co et Ni, la transmission est fortement atténuée par les fortes valeurs de  $\varepsilon''_m$  ; alors que dans le cas du W, il s'agit d'un phénomène purement diffractif. Compte tenu de l'absence de véritable mode PS il n'est pas surprenant que la transmission des réseaux de W soit si faible comparée aux métaux nobles. Elle est d'ailleurs la plus faible parmi celle des métaux de transition. Dans le cas d'applications pratiques, pour lesquelles la transmission absolue

est importante, seuls les métaux nobles apparaissent pertinents dans la gamme du visible.

Indépendamment des propriétés des métaux, les paramètres géométriques ont également leur importance. Alors qu'un certain nombre de paramètres ont déjà été discutés dans la littérature [46], on peut souligner que, simplement en changeant un facteur tel que le rapport entre la longueur d'onde de résonance et le diamètre de l'ouverture, cela induit des changements dans la dynamique du phénomène de transmission. En d'autres termes, l'ajustement minutieux de tels paramètres permet de contrôler la longueur de propagation des PS et leur diffusion sur le réseau permettant ainsi de maîtriser la largeur des pics de transmission. La chute d'intensité avec la longueur d'onde observée dans la figure 3.6 n'implique pas nécessairement que des transmissions ne puissent pas être observées aux courtes longueurs d'onde. Dans le cas de l'Ag, un simple ajustement des paramètres géométriques permet de rehausser le signal transmis. Ainsi, il est possible d'adapter la transmission des réseaux à une application donnée, par un choix approprié du métal et des paramètres géométriques de la structure.

Au cours de ce chapitre nous nous sommes cantonnés à étudier l'influence des propriétés optiques des métaux sur la transmission exaltée dans le visible, mais nous devons souligner que ce phénomène a également été observé pour d'autres matériaux (dans diverses gammes spectrales) : semi-conducteurs [102–104], polymères conducteurs [105], oxydes de métaux [106–108]... Toutes ces études confirment l'importance des constantes diélectriques des matériaux composant les réseaux de trous sub-longueurs d'onde dans le phénomène de transmission exaltée.

# Chapitre 4

## Effets de taille finie dans le phénomène de transmission exaltée

### 4.1 Introduction

Un réseau de trous sub-longueurs d'onde peut donner lieu à une transmission bien supérieure à la somme des transmissions des trous pris séparément. L'aspect collectif de ce phénomène nous a conduit à nous interroger sur les conséquences de la taille finie de ces structures dans la pratique, d'un point de vue fondamental mais également en regard des nombreuses applications du phénomène de transmission exaltée.

Comme nous avons pu le voir, l'excitation de plasmons de surface (PS) est au cœur du mécanisme de la transmission exaltée. L'interaction de la lumière « libre » avec ces modes « piégés » est rendue possible par la diffraction provoquée par le réseau. Ce phénomène fournit à la lumière incidente une impulsion supplémentaire, égale à un multiple entier du vecteur de Bragg de la structure périodique, nécessaire pour avoir un couplage efficace aux PS.

Or, lorsque que le nombre de périodes composant un réseau augmente, les pics de diffraction de la structure (dont la position coïncide avec celle des vecteurs Bragg) deviennent de mieux en mieux définis [109]. De ce fait la taille du

réseau est présumée influencer le couplage entre la lumière et les PS. Des mesures expérimentales dans l'infra-rouge [76], le régime téra-hertz [79] et le domaine du visible [80] confirment cette hypothèse.

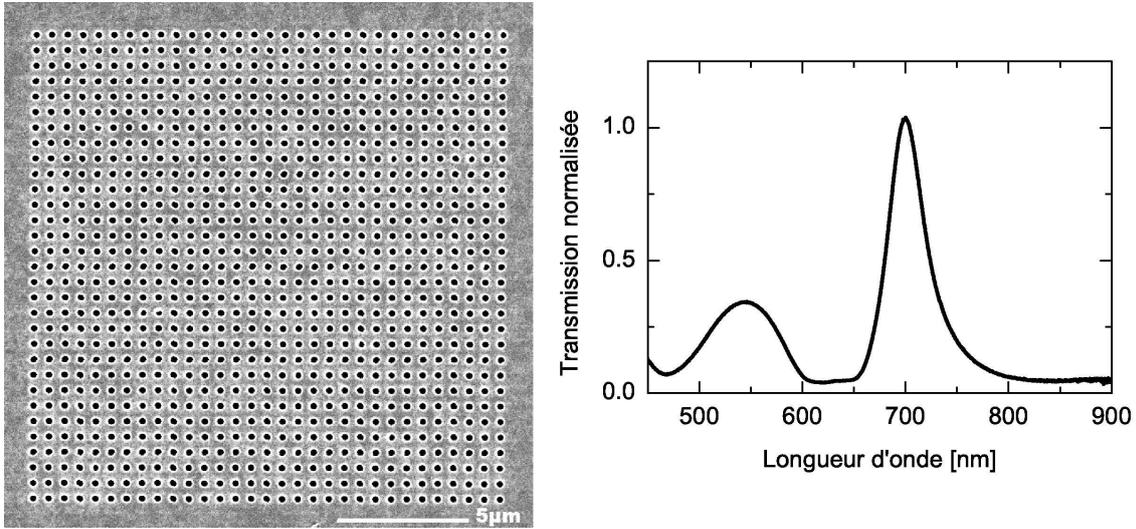
Tout d'abord, la taille finie d'un système sous-entend la présence de « bords ». Les conséquences directes, liées à la présence de ces limites seront mises à jour dans la première partie de ce chapitre. Nous présenterons ensuite des travaux que nous avons réalisés sur des effets de taille dans la réponse spectrale des réseaux. Ces résultats, corrélés à la longueur de propagation finie des plasmons de surface, nous amèneront finalement à mesurer l'efficacité relative de la transmission exaltée.

Durant cette investigation nous avons eu l'opportunité de collaborer avec des groupes de théoriciens : le groupe du Pr. L. Martín-Moreno (Zaragoza) et le groupe du Pr. F.J. García-Vidal (Madrid). Aussi, nous intégrerons à nos résultats expérimentaux un certain nombre de leurs calculs. Comme nous le verrons cette collaboration a permis d'une part d'obtenir une interprétation plus précise des observations expérimentales, et d'autre part de valider les différentes approximations faites dans les simulations numériques.

## 4.2 Profil d'émission des réseaux

Dans un premier temps nous nous sommes intéressés à la réémission de la lumière par un réseau de trous sub-longueurs d'onde. Ces profils d'émission, obtenus en imageant la face de sortie d'un réseau illuminé par un faisceau de lumière collimaté, nous permettront de mettre en évidence de surprenants effets de bords.

La figure 4.1 présente une image MEB de la structure que nous avons choisie d'étudier. Il s'agit d'un réseau de période  $p = 600$  nm composé de  $31 \times 31$  trous et de diamètre  $d = 260$  nm gravé dans un film suspendu de 225 nm d'épaisseur. Le spectre de transmission de cette structure, également reproduit dans la figure 4.1, possède une allure caractéristique des réseaux suspendus dans l'air. Il possède notamment un minimum de transmission aux longueurs d'onde avoisinant la période du réseau, suivi à environ 700 nm du pic de plus basse énergie correspondant aux modes PS (1,0) (voir relation 1.11). Au cours de cette étude nous nous sommes plus particulièrement intéressés à ces modes (1,0) qui se propagent suivant les axes



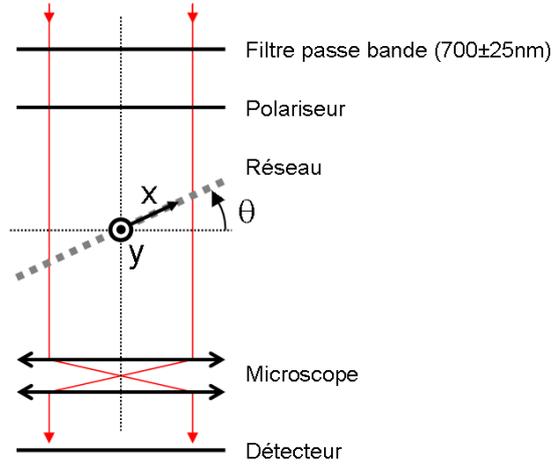
**Fig. 4.1** – Image obtenue par microscopie électronique à balayage et spectre de transmission d'un réseau de  $31 \times 31$  trous ( $p = 600$  nm et  $d = 260$  nm) gravé dans un film d'argent suspendu de 225 nm d'épaisseur.

principaux du réseau.

Nous avons excité uniquement les modes  $(1, 0)$  en illuminant le réseau à 700 nm. Comme le montre le schéma présenté figure 4.2, ceci a été réalisé en sélectionnant les longueurs d'onde du faisceau de lumière blanche incident avec un filtre passe-bande centré à 700 nm ( $\pm 25$  nm). Un polariseur nous a ensuite permis de choisir suivant quel axe du réseau nous excitions les PS. Pour finir, nous avons imagé la face de sortie du réseau en utilisant notre montage expérimental en mode imagerie (voir section 2.4).

La figure 4.3 présente les images obtenues pour deux polarisations orthogonales et différentes inclinaisons du réseau. La 3<sup>ème</sup> colonne reproduit les résultats de simulations numériques réalisées par nos collaborateurs en utilisant un formalisme de décomposition modale qui est particulièrement bien adapté au traitement de systèmes finis. Cette méthode sera décrite succinctement dans la section 4.3.2.

Concentrons nous tout d'abord sur les images obtenues lorsque le réseau est illuminé à incidence normale (c'est-à-dire pour  $\theta = 0^\circ$ ). Les profils d'émission mesurés (figure 4.3(a) et (b)) accusent un important effet de polarisation. Nous remarquons



**Fig. 4.2** – Montage expérimental. Le système de coordonnées est également représenté.

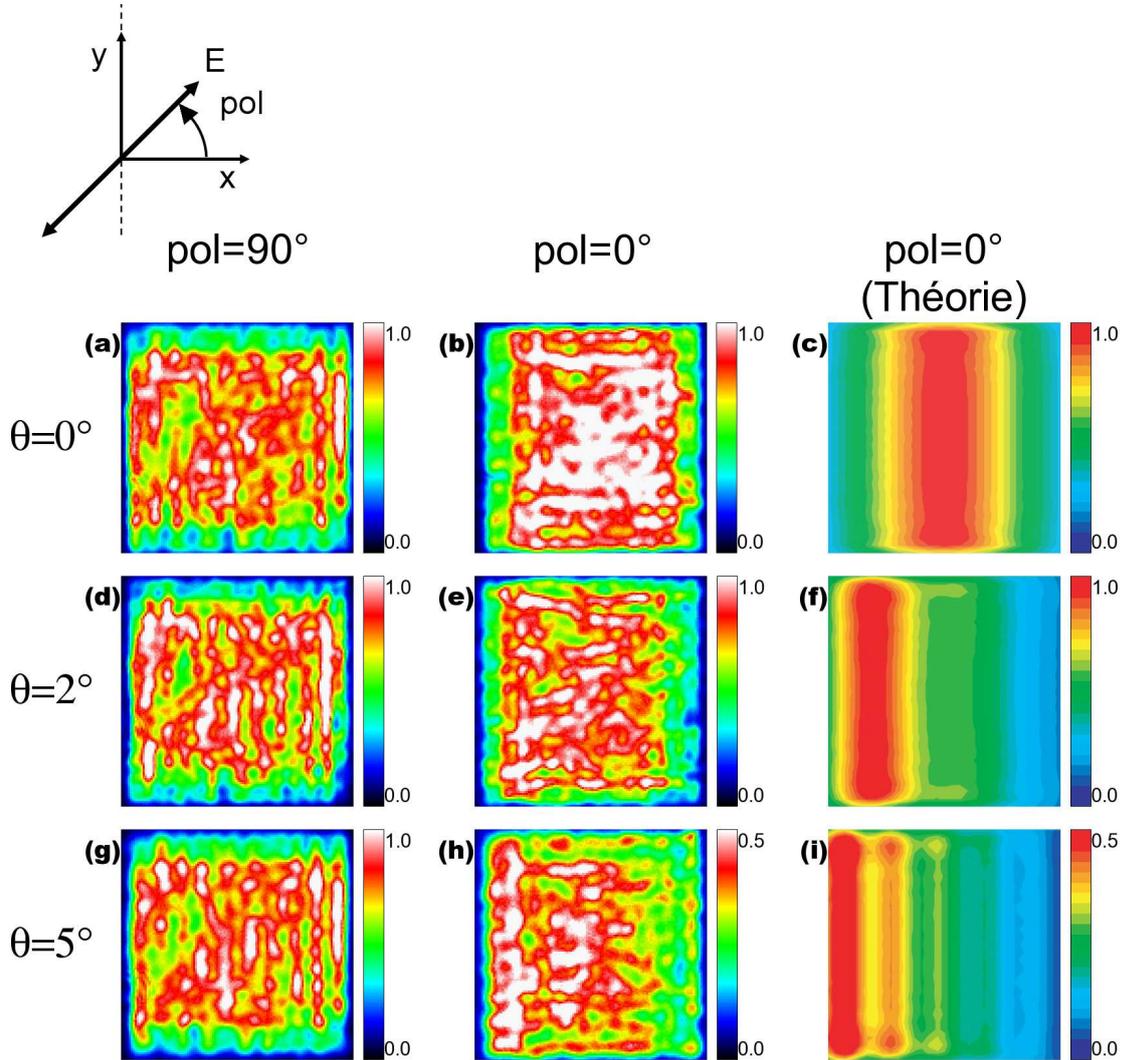
immédiatement une forte variation de l'intensité réémise par le réseau, déterminée dans la direction de polarisation, également direction de propagation des PS. Rappelons en effet qu'à incidence normale la relation de couplage s'écrit simplement (voir relation 1.10) :

$$\mathbf{k}_{\text{PS}} = n \frac{2\pi}{p} \hat{\mathbf{x}} + m \frac{2\pi}{p} \hat{\mathbf{y}}, \quad (4.1)$$

montrant que la résonance «  $(1, 0)$  » est dégénérée quatre fois ( $n = \pm 1$  et  $m = 0$ , ou,  $n = 0$  et  $m = \pm 1$ ). Toutefois lorsque la lumière est polarisée suivant un axe principal du réseau on excite uniquement les modes plasmons se propageant suivant cette même direction selon des sens opposés. De ce fait, lorsque le faisceau incident est polarisé suivant l'axe  $x$  ( $y$ ) on excite symétriquement les modes  $(+1, 0)$  et  $(-1, 0)$  ( $(0, +1)$  et  $(0, -1)$ ).

Ces premières images traduisent donc la nature délocalisée des PS à la surface du réseau, montrant que ces ondes sont sensibles aux bords dans leur direction de propagation. Par ailleurs, le fait que l'intensité soit uniforme (et maximale) au centre du réseau montre la portée limitée des effets de bords, témoignant de la longueur de propagation finie des plasmons sur le réseau.

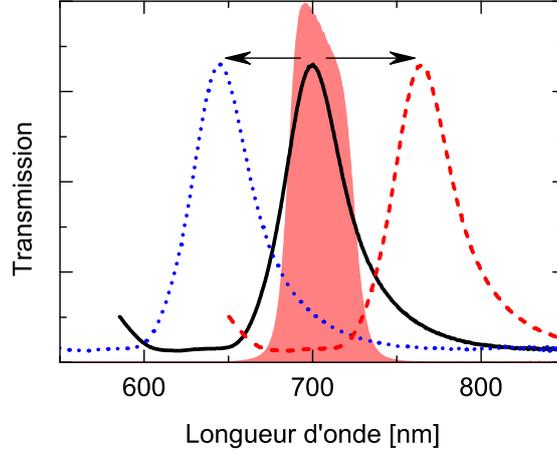
Plus surprenant, nous remarquons qu'en inclinant légèrement le réseau, l'énergie lumineuse n'est plus réémise de manière symétrique par la structure pour la polarisation perpendiculaire à l'axe de rotation ( $pol = 0^\circ$ ). Au contraire, dans le cas où



**Fig. 4.3** – Profils d’émission d’un réseau pour deux polarisations orthogonales et différentes inclinaisons de la structure. La 3<sup>eme</sup> colonne correspond aux résultats de simulations numériques utilisant les mêmes paramètres géométriques que les expériences. Les échelles de couleurs sont en unités arbitraires. La direction de la polarisation incidente est mesurée par rapport à l’axe  $x$  (angle  $pol$ ).

la polarisation est parallèle à l’axe de rotation ( $pol = 90^\circ$ ), nous n’observons pas de variation notable lorsque que l’on incline le réseau.

Cette différence provient du fait que lorsque que l’on incline la structure, le vecteur d’onde de la lumière incidente acquiert une projection non nulle suivant la surface du réseau. Dans le cas présent, la rotation d’angle  $\theta$  s’effectuant suivant un



**Fig. 4.4** – Représentation schématique du principe de l'expérience. La courbe en trait continu noir représente le spectre de transmission du réseau à incidence normale. La zone colorée correspond à la bande passante du filtre utilisé pour sélectionner les longueurs d'onde incidentes lors de la mesure des profils d'émission. Les flèches indiquent la levée de dégénérescence qui a lieu lorsque l'on incline le réseau : un mode se déplace vers les courtes longueurs d'onde, l'autre vers les grandes longueurs d'onde. Notons que dans un des cas la position du minimum coïncide alors aux longueurs d'onde incidentes.

axe principal du réseau (l'axe  $y$ ), cela conduit à réécrire la relation de couplage de la façon suivante :

$$\mathbf{k}_{\text{PS}} = \left(n \frac{2\pi}{p} - \|\mathbf{k}_0\| \sin\theta\right) \hat{\mathbf{x}} + m \frac{2\pi}{p} \hat{\mathbf{y}} \quad (4.2)$$

dans cette relation,  $\mathbf{k}_0$  est le vecteur d'onde de la lumière incidente. Cette relation montre que lorsque l'on incline progressivement l'échantillon, la projection de  $\mathbf{k}_0$  augmente, faisant lever la dégénérescence des modes se propageant suivant la direction de cette projection (axe  $x$ ).

En d'autres termes, la position du mode PS, dont le sens du vecteur de propagation coïncide avec celui de la projection du vecteur d'onde de la lumière, se déplace graduellement vers les courtes longueurs d'onde (grande valeur de  $\|\mathbf{k}_{\text{PS}}\|$ ) lorsque  $\theta$  augmente. Et symétriquement, la position du mode PS dont le sens du vecteur de propagation est opposé à celui de la projection du vecteur d'onde de la lumière incidente se déplace vers les grandes longueurs d'onde (petite valeur de  $\|\mathbf{k}_{\text{PS}}\|$ ). Dans notre cas, un angle  $\theta$  positif correspond à une projection négative du vecteur d'onde de la lumière incidente sur l'axe  $x$ . C'est donc la position du mode  $(-1, 0)$

qui se décale vers les courtes longueurs d'onde et la position du mode  $(+ \prec 1, 0)$  qui se décale vers les grandes longueurs d'onde.

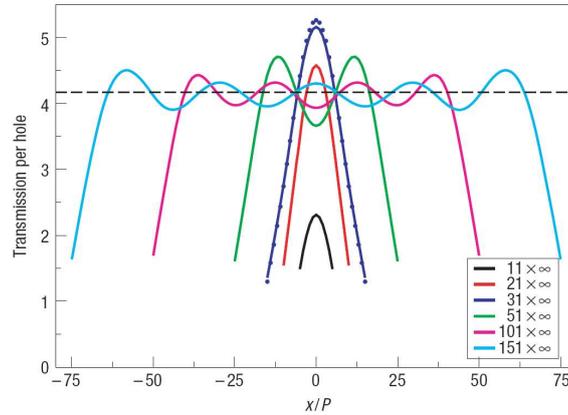
Ces remarques, à elles seules ne sont toutefois pas suffisantes pour expliquer la dissymétrie du profil d'émission du réseau. Pour cela il est nécessaire de prendre également en considération le profil caractéristique des résonances dans le phénomène de transmission exaltée. Leur profil est en effet asymétrique, marqué par un minimum prononcé (correspondant à une interférence destructive), précédant à plus courte longueur d'onde le maximum de transmission.

La subtilité réside dans le fait que pour cette expérience nous avons choisi d'éclairer le réseau aux longueurs d'onde correspondant au maximum de transmission à incidence normale. Ainsi, lorsque que l'on incline légèrement le réseau, le mode PS qui se déplace aux grandes longueurs d'onde verra son minimum coïncider aux longueurs d'onde incidentes et ne participera dès lors que peu au processus de transmission (voir figure 4.4). L'énergie convoyée vers un côté du réseau est de ce fait préférentiellement réémise, expliquant l'asymétrie du profil d'émission.

Par contre, lorsque la lumière est polarisée suivant l'axe de rotation (ici l'axe  $y$ ) la relation de couplage ne change pas : les modes PS se propageant dans cette direction restent dégénérés malgré l'inclinaison du réseau, expliquant pourquoi nous n'observons pas de variation notable sur le profil d'émission.

Ces simples considérations ne permettent néanmoins pas d'expliquer tous les détails observés sur les images expérimentales [110]. Seul un calcul rigoureux permet de reproduire précisément les observations expérimentales (voir figure 4.3(c), (f) et (i)).

Les simulations menées par nos collaborateurs [110] montrent que le profil d'émission d'un réseau évolue avec le nombre de trous. À incidence normale, deux régimes peuvent être distingués (voir figure 4.5). Pour les petits réseaux (jusqu'à  $31 \times 31$  trous pour les paramètres de cette expérience), le profil d'émission est maximum au centre de la structure et son intensité moyenne augmente avec le nombre de trous (en accord avec les effets de taille finie discutés dans la prochaine section). Pour des structures plus étendues, le profil d'émission est composé d'une zone centrale presque uniforme (l'intensité oscille autour d'une valeur moyenne correspondant à la transmission d'un réseau infini) entourée d'une zone périphérique



**Fig. 4.5** – (D’après [110]) Vue en coupe du profil d’émission d’un réseau semi-infini  $N \times \infty$  pour des valeurs croissantes du nombre de trous  $N$  le composant. La coupe a été effectuée suivant la dimension finie du réseau qui est également la direction de la polarisation incidente. La ligne discontinue correspond au profil d’émission d’un réseau infini. Les paramètres géométriques utilisés pour ces simulations sont les mêmes que ceux des réseaux de la figure 4.3.

dont l’extension spatiale n’évolue globalement pas avec le nombre de trous.

L’approche théorique permet notamment d’identifier deux contributions principales dans ces effets de bord. L’une d’entre elles correspond à la réflexion des PS sur les bords de la structure. Cette contribution est toutefois uniquement importante pour les structures les plus étendues, l’interférence entre les différentes ondes de surface réfléchies étant alors responsable des oscillations calculées dans la zone centrale du profil d’émission. L’autre contribution tient directement compte de l’absence de trous au delà de la structure. Elle peut être considérée comme une illumination négative provenant de trous « fantômes » composant un motif infini s’étendant au delà des limites du réseau. Cette contribution négative traduit la diminution de l’intensité du profil d’émission au voisinage des bords de la structure. Dans le cadre de l’expérience présentée dans la figure 4.3, à incidence normale, la contribution négative provenant des trous fantômes localisés à gauche et à droite du réseau est équivalente. De ce fait le profil d’émission du réseau est symétrique, caractérisé par une intensité maximale au centre. Par contre lorsque le réseau est incliné, les contributions venant de la gauche et de la droite du réseau ne sont plus équivalentes (pour la même raison que celle que nous évoquons précédemment au sujet des modes  $(\pm 1, 0)$ ); l’une dominant par rapport à l’autre, expliquant la dis-

symétrie du profil d'émission.

Pour résumer, nous avons observé que le profil d'émission des réseaux est loin d'être parfaitement uniforme, particulièrement pour de faibles inclinaisons de la structure. Ces observations permettent d'apprécier différents aspects subtils du mécanisme de la transmission exaltée.

## 4.3 Effets de la taille finie dans le phénomène de transmission exaltée

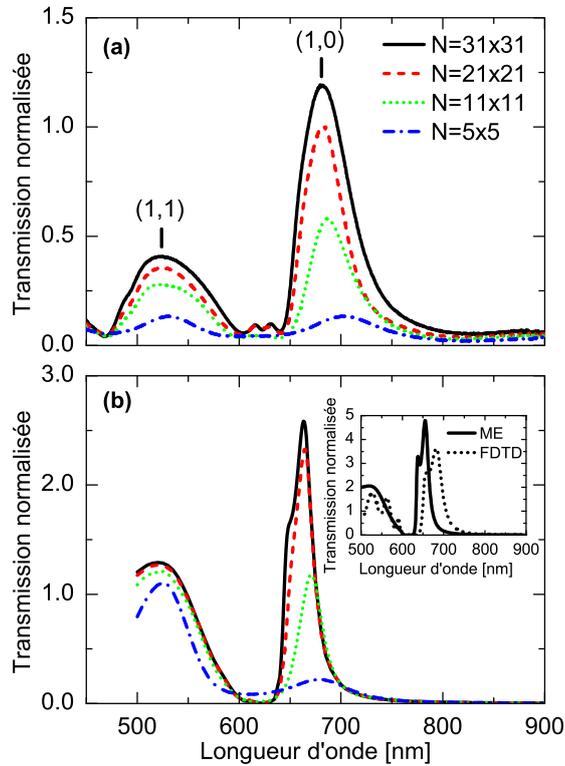
Comme nous l'avons introduit au début de ce chapitre, ces effets de taille finie peuvent également s'observer spectralement [76, 79, 80]. Le travail décrit dans cette partie a pour objectif de compléter ces premières études afin d'enrichir notre compréhension du phénomène de transmission exaltée.

### 4.3.1 Protocole expérimental

Pour cette étude nous avons fabriqué des réseaux de trous sub-longueurs d'onde de tailles croissantes. Ces structures, gravées dans un même film d'argent suspendu de 275 nm d'épaisseur par lithographie FIB, consistent en des ouvertures circulaires disposées suivant une maille élémentaire carrée de période  $p = 600$  nm.

Précisons que l'utilisation d'un film suspendu se révèle avantageuse du fait que la constante diélectrique est la même de part et d'autre du film métallique. En effet, cette configuration optimise d'une part l'efficacité de transmission [58], et d'autre part simplifie la réponse spectrale des structures puisque dans ce cas une seule série de pics est attendue (contrairement au cas asymétrique). Notons également que l'absence de substrat facilite le processus de gravure. La matière arrachée par le FIB peut en effet s'échapper à travers l'échantillon, ce qui permet un meilleur contrôle du profil des ouvertures.

Nous avons ensuite collecté les spectres de transmission de ces réseaux composés d'un nombre de trous ( $N$ ) croissant ayant un diamètre constant. La figure 4.6 reproduit les données obtenues pour des réseaux comportant  $N = 5 \times 5$ ,  $11 \times 11$ ,  $21 \times 21$  et  $31 \times 31$  ouvertures de diamètre  $d = 270$  nm. De la même manière que



**Fig. 4.6** – (a) Spectres de transmission de réseaux de taille finie composés de  $N = 5 \times 5$ ,  $11 \times 11$ ,  $21 \times 21$  et  $31 \times 31$  ouvertures. Ces structures ont été gravées dans un film d’argent suspendu de 275 nm d’épaisseur, et ont une période  $p = 600$  nm et un diamètre de trous  $d = 270$  nm. Les transmissions présentées sont normalisées par rapport à l’aire occupée par les trous. Les marques verticales indiquent la position des résonances libellées par les indices  $(n, m)$  introduits dans relation 1.11. (b) Spectres de transmission, également normalisés par rapport à l’aire occupée par les trous, obtenus par simulation numérique en utilisant le formalisme de la décomposition modale (ME). Les paramètres géométriques utilisés sont les mêmes que dans les expériences. Encart : Comparaison entre les calculs utilisant la méthode ME et FDTD (finite difference time domain) dans le cas d’un réseau infini.

précédemment, ces spectres possèdent plusieurs pics associés aux différents ordres  $(n, m)$  de diffraction du réseau (voir relation 1.11). Pour la suite de cette étude nous avons choisi de suivre plus particulièrement l’évolution de la résonance de plus basse énergie (située à environ 680 nm) correspondant aux modes PS  $(1, 0)$  car celle-ci est spectralement bien isolée des autres résonances.

Comme nous pouvons le constater, la valeur du maximum de transmission associé à cette résonance augmente avec  $N$ . Cette évolution témoigne du caractère collectif de la transmission exaltée. Tel que nous l'avons introduit au début de ce chapitre, cet accroissement de la transmission est attribué à une augmentation de l'efficacité de couplage de la lumière incidente avec les PS, conséquence du fait que les ordres de diffraction du réseau deviennent de mieux en mieux définis lorsque le nombre de périodes composant le réseau augmente [109].

Remarquons d'ailleurs que la transmission augmente jusqu'à excéder la valeur unité. La transmission étant ici normalisée par rapport à l'aire occupée par les trous, dans ce régime le flux de photons émergent d'une ouverture est supérieur au flux illuminant cette même ouverture. Cela correspond au régime de transmission extraordinaire [47]. Avec les paramètres particuliers de ces structures, cette condition spéciale est déjà atteinte pour un réseau de  $20 \times 20$  trous.

Plus subtilement, la résonance se déplace légèrement vers les courtes longueurs d'onde et son profil devient asymétrique lorsque  $N$  augmente. Ces observations s'accordent parfaitement à une augmentation de la contribution résonante liée à l'excitation de PS par rapport à celle de la transmission directe à travers les ouvertures dans le processus de transmission. En effet, lorsque les modes plasmoniques deviennent de mieux en mieux définis avec  $N$ , l'analyse de Fano du phénomène de transmission exaltée prévoit que le profil spectral des pics qui leur sont associés prenne une forme asymétrique, typique de ce genre de processus (voir section 1.4).

### 4.3.2 Approche théorique

De nos jours, le calcul du spectre de transmission de réseaux infiniment étendus peut se faire avec une précision arbitraire, en utilisant par exemple la méthode des éléments finis (en anglais « finite difference time domain », abrégé FDTD) [88]. Les prédictions théoriques obtenues par cette méthode se révèlent être très proches des expériences dans la limite des grands réseaux. Toutefois cette méthode ne permet pas de tenir compte de la taille finie des structures. Les structures plus petites ne peuvent en effet qu'être traitées de manière approximative.

En vue d'une comparaison théorie-expérience, des calculs ont donc été réalisés en utilisant une méthode théorique approximative basée sur une décomposition modale (ME) du champ électromagnétique dans les différentes régions de la structure. Une

description détaillée de cette technique, idéale pour traiter un nombre fini de modulations gravées dans un film métallique, n'est pas l'objectif de ce travail. Pour cela nous renvoyons le lecteur à la référence [111]. Nous nous limiterons ici à esquisser les approximations de bases utilisées pour traiter des métaux réels.

Le problème essentiel des calculs pour un métal réel est de fixer le rapport entre les composantes tangentielles des champs électrique et magnétique à la surface de la structure. Pour un métal réel, une relation d'impédance existe entre ses composantes, déterminée par la permittivité  $\varepsilon(\omega)$  du métal. Pour un bon conducteur, cette relation prend une forme très simple dite « impédance de surface ». C'est dans cette approximation que se développe la ME suivant une procédure simple, permettant de traiter les structures finies. Cette méthode approximative donne de bons résultats dans le visible [88]. Pour cette approche théorique les ouvertures composant le réseau sont considérées comme des guides d'onde fonctionnant au voisinage de leur fréquence de coupure. La valeur prise pour cette constante de propagation du mode fondamental à l'intérieur des guides est celle donnée par un calcul indépendant réalisé pour une ouverture unique dans un métal réel. Pour prendre en compte également la pénétration du champ électromagnétique dans le métal, le diamètre des trous est élargi de deux fois la profondeur de peau du métal [59].

Afin d'estimer la validité de cette approche théorique, l'encart de la figure 4.6(b) présente une comparaison entre le spectre de transmission d'un réseau périodique infini, calculé par la méthode « exacte » FDTD et la méthode « approximative » ME. Les résultats obtenus par la méthode ME reproduisent bien les pics de transmission exaltée. Néanmoins, pour ces paramètres géométriques, standards pour une expérience de transmission exaltée dans le visible, la méthode ME prédit des pics de transmission qui sont décalés vers le bleu de 25 nm par rapport aux résultats de la méthode FDTD. De plus, bien que le pic de transmission obtenu par ME soit très proche des valeurs théoriques de référence données par FDTD, ce pic approximé est environ 40% plus intense et 40% plus fin. Nous devons garder ces ordres de grandeur en tête lors de la comparaison de ces calculs avec les expériences car ils indiquent que la méthode ME donne uniquement des valeurs semi-quantitatives.

La figure 4.6(b) présente les spectres de transmission théoriques, calculés pour des réseaux ayant les mêmes paramètres que dans les expériences. Comme nous pou-

vons le constater, ces simulations reproduisent parfaitement l'évolution des spectres de transmission expérimentaux lorsque le nombre de trous augmente.

### 4.3.3 Évolution de l'intensité de transmission

Afin d'obtenir une connaissance plus approfondie de ces effets de taille nous avons répété l'expérience précédente pour différents diamètres d'ouverture. Nous avons extrait, des différents spectres de transmissions mesurés, l'intensité ainsi que la largeur à mi-hauteur du pic (1,0). Ces données sont présentées dans la figure 4.7.

Les intensités transmises suivent essentiellement la même tendance que celle décrite précédemment, c'est-à-dire l'intensité maximale de transmission croît lorsque  $N$  augmente. Néanmoins nous pouvons constater que plus le diamètre des ouvertures est grand, plus rapidement la transmission atteint un régime de saturation.

L'évolution de l'intensité du maximum de transmission semble suivre une simple loi de saturation :

$$T(N) = T_{max}(1 - \exp(-N/N_c)) \quad (4.3)$$

dans laquelle,  $T_{max}$  représente la transmission à saturation et  $N_c$  un nombre de trous qui caractérise la saturation du système. Nous avons ajusté cette fonction de saturation aux données expérimentales en variant ces deux paramètres. Les meilleurs résultats obtenus, reportés dans la figure 4.7(a), correspondent à  $N_c = 105, 190$  et  $495$  ouvertures pour respectivement  $d = 295, 270$  et  $215$  nm. Les valeurs prises par  $N_c$  nous permettent de décrire quantitativement la saturation en terme de taille de structure.

Comme nous pouvons le voir dans la figure 4.7(c), les calculs théoriques basés sur la méthode ME reproduisent bien les tendances expérimentales, avec néanmoins une légère différence dans les intensités. Comme nous l'avons soulevé précédemment, la méthode ME prédit toujours des transmissions plus élevées et des largeurs plus fines que les simulations FDTD. Ceci conduit à une erreur systématique dans la théorie qui suffit à expliquer les différences visibles en comparant les expériences et les calculs utilisant la méthode ME (figures 4.7(a) et 4.7(c)).

L'évolution des transmissions théoriques peut également être décrite à l'aide de la relation 4.3. Nous obtenons les valeurs  $N_c = 94$  et  $213$  ouvertures pour respectivement  $d = 295$  et  $270$  nm. Nous pouvons malheureusement difficilement extraire

une valeur de  $N_c$  pour le plus petit diamètre considéré ( $d = 215$  nm). Les valeurs de transmission qui lui sont associées suivent une évolution différente de celle observée pour les plus grands diamètres. Ceci est sans doute lié à la manière dont la pénétration du champ électromagnétique dans le métal est prise en compte dans les calculs ME. En effet, tous les diamètres ont été élargis phénoménologiquement par une quantité constante ; une correction sans doute trop forte lorsque la dimension des ouvertures décroît significativement.

Malgré ce petit désaccord, expérience et théorie montrent que la transmission augmente avec la taille du réseau jusqu'à atteindre un régime de saturation. Et que la vitesse à laquelle le régime de saturation est atteint, représenté par  $N_c$ , augmente avec  $d$ .

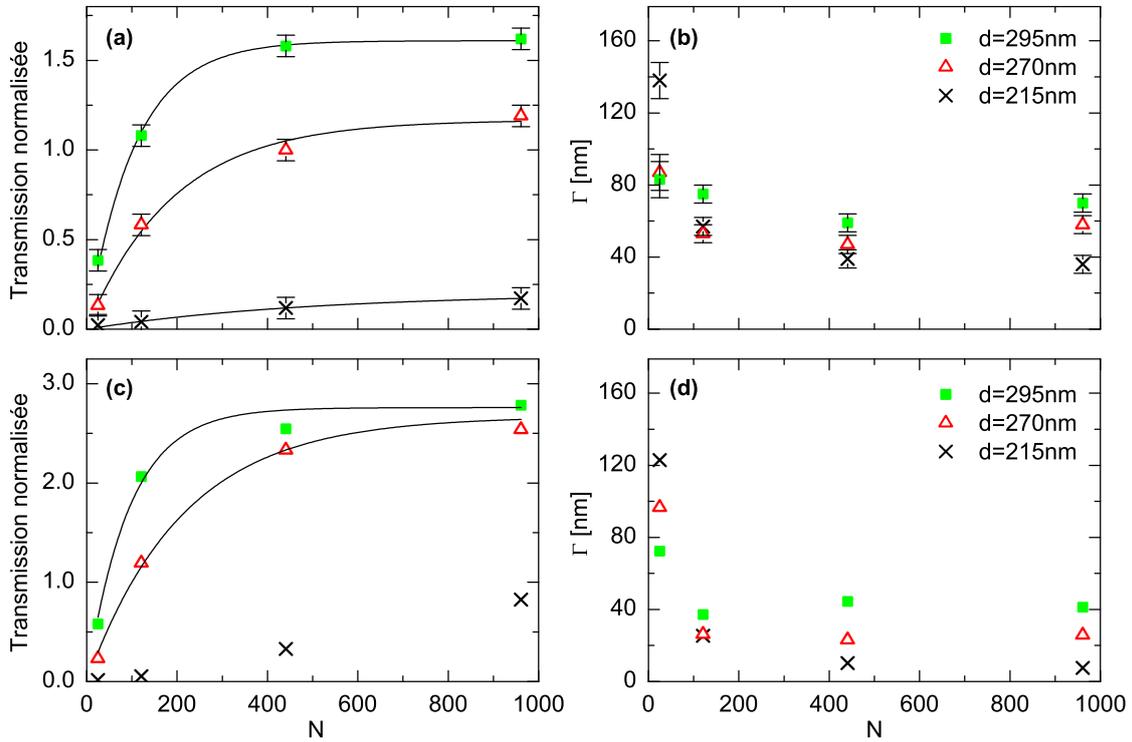
#### 4.3.4 Évolution des largeurs des résonances

Pour avoir plus d'informations sur le mécanisme sous-jacent, il est intéressant de suivre les largeurs à mi-hauteur ( $\Gamma$ ) des résonances. Ainsi que nous le soulevions dans la section 3.6, elles reflètent en effet le temps de vie des PS sur le réseau [44].

Comme nous pouvons le voir dans la figure 4.7(b), pour tous les diamètres considérés, la largeur des pics diminue vers des asymptotes horizontales lorsque que  $N$  augmente. Ces limites inférieures correspondent aux pertes totales du système, c'est-à-dire aux pertes internes (absorption dans le métal) et aux pertes radiatives (diffusion par les ouvertures). Rappelons à ce moment que nous avons évalué dans le chapitre précédent (section 3.6) que les pertes radiatives constituaient la contribution dominante.

Ces mesures montrent également que la valeur de ces asymptotes augmente avec le diamètre des trous. Tenant compte du fait que toutes les structures ont été gravées dans le même film avec le même niveau de précision, cette tendance peut être uniquement expliquée par le fait que l'augmentation du diamètre des ouvertures induit une augmentation de la diffusion des PS sur le réseau, et de ce fait, une augmentation des pertes radiatives et de la valeur des asymptotes [44].

En considérant la valeur de ces asymptotes et en supposant une décroissance exponentielle des PS, il est possible d'évaluer la longueur de propagation maximale des PS ( $lp_{max}$ ) pour un réseau infini. En effet, en considérant les relations présentées en section 3.6, connaissant la largeur totale de la résonance (supposé simplement



**Fig. 4.7** – (a) Intensité maximale de transmission, mesurée expérimentalement, en fonction du nombre de trous ( $N$ ) composant le réseau pour différents diamètres d'ouverture ( $d = 215, 270,$  et  $295$  nm). Les lignes continues représentent les meilleurs fits obtenus en utilisant la relation 4.3. (b) Largeurs à mi-hauteur des résonances ( $\Gamma$ ) correspondant aux données présentées dans le cadran (a). Les barres d'erreur ont été déterminées à partir de la dispersion des données obtenues par des mesures effectuées sur plusieurs structures similaires sur un échantillon de test. (c) et (d) Résultats des simulations numériques utilisant les mêmes paramètres géométriques que dans les expériences présentées dans les cadrans (a) et (b).

homogène) nous pouvons évaluer le temps de vie de la résonance PS et la longueur de propagation qui lui est associée [44] :

$$l_{p_{max}} = \frac{\lambda^2}{2\pi \Gamma(\lambda) n_{eff}}. \quad (4.4)$$

Dans cette relation  $\lambda$  est la longueur d'onde de la résonance,  $\Gamma(\lambda)$  sa largeur à demi hauteur exprimé en nanomètre et  $n_{eff}$  est l'indice de réfraction effectif de l'interface ( $\Re[\sqrt{\varepsilon_m \varepsilon_d / (\varepsilon_m + \varepsilon_d)}]$ ). En ce qui concerne les résultats expérimentaux nous obte-

nons des valeurs de propagation d'environ  $2.4 \mu\text{m}$  et  $3.4 \mu\text{m}$  pour les diamètres de 295 nm et 270 nm respectivement. Une valeur supérieure à  $4 \mu\text{m}$  est attendue pour le cas du diamètre de 215 nm. En conservant à l'esprit que l'élément clé, permettant la transmission exaltée, est la propagation des PS sur plusieurs périodes du réseaux, il apparaît clairement que la transmission d'un réseau atteindra un régime de saturation lorsque ses dimensions latérales excéderont  $lp_{max}$ .

La figure 4.7(d) présente les valeurs des largeurs obtenues théoriquement. De la même manière que pour les intensités de transmission, les tendances expérimentales sont très bien reproduites par les simulations malgré une différence de valeur absolue que nous avons déjà abordée précédemment.

Il est intéressant de remarquer que pour les petits nombres de trous, la résonance s'affine lorsque  $d$  augmente. Cette tendance est exactement à l'opposé de ce que nous observons dans la limite des grands nombres de trous. Pour un petit nombre de trous la résonance ne reflète sans doute pas un effet collectif (le facteur de structure des petits réseaux est mal défini) mais est plutôt associé au couplage qui s'effectue au niveau des ouvertures prises individuellement. Nos mesures semblent donc indiquer que la diffusion de la lumière par une ouverture unique permet d'exciter des PS avec une efficacité qui augmente avec la taille de l'ouverture. Une telle évolution a été observé récemment dans un autre contexte expérimental [112].

Finalement, ces expériences nous ont montré que lorsque le diamètre de l'ouverture diminue pour une période donnée, la longueur de propagation des PS augmente. Le phénomène de transmission exaltée est fondé sur l'excitation des PS, cette considération suffit à expliquer les différences de vitesse de saturation mesurées lorsque le diamètre des ouvertures varie.

Pour un diamètre d'ouverture donné, l'intensité de transmission augmente avec le nombre de trous. L'une des premières études expérimentales, portant sur la transmission exaltée, remarquait déjà l'influence de la taille de la structure [76]. Par la suite, une étude plus détaillée menée dans le domaine des infra-rouges lointains [79] a confirmé cette dépendance qui a été attribuée au facteur de structure du réseau. En effet, comme nous l'introduisons précédemment, ce dernier devient de mieux en mieux défini lorsque le nombre de trous composant le système augmente. Néanmoins cette seconde étude s'est limitée à suivre l'intensité que pour un très

faible nombres d'ouvertures (surtout si l'on tient compte de la longueur de propagation des PS dans l'infra-rouge lointain), de sorte que les auteurs n'ont pas atteint le régime de saturation que nous observons dans nos mesures [113]. Nos résultats montrent à nouveau l'importance du facteur de structure dans la définition de la résonance PS, mais nos données soulignent en plus la limite supérieure imposée par le temps de vie restreint des PS à la surface du réseau.

Selon l'idée que les PS collectent l'énergie à la surface du réseau, une augmentation de leur propagation devrait résulter en un renforcement de l'exaltation du champ à la surface du réseau. Par conséquent, nous nous attendons à ce que l'efficacité relative de transmission d'un réseau par rapport à une ouverture unique augmente lorsque  $d$  diminue.

## 4.4 Efficacité relative de la transmission exaltée

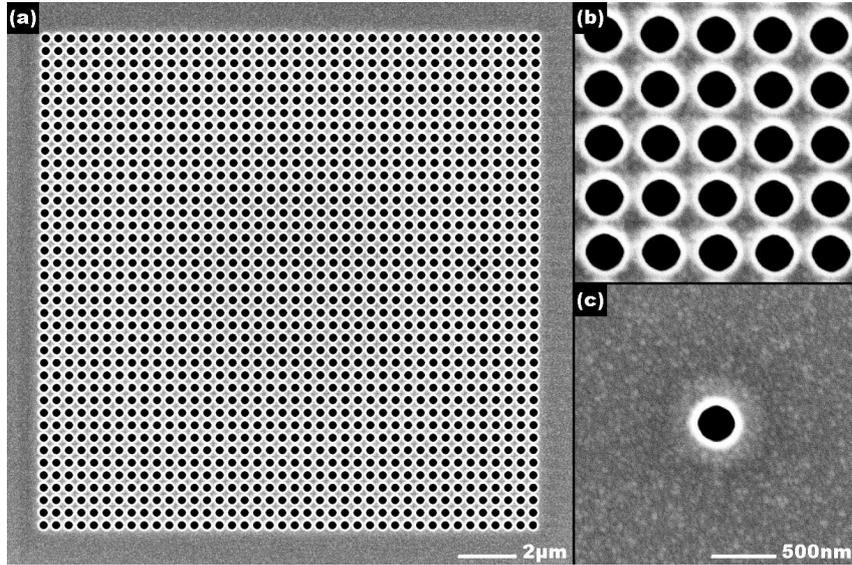
Dans cette partie, nous nous proposons de comparer la transmission d'un réseau de trous à celle d'une ouverture unique pour différents diamètres d'ouverture. Ces mesures nous permettront de vérifier premièrement l'hypothèse émise précédemment, et deuxièmement, d'obtenir des valeurs d'efficacité atteignable expérimentalement.

### 4.4.1 Protocole expérimental

Nous avons fabriqué des réseaux à maille carrée ( $p = 430$  nm) composés de  $40 \times 40$  trous ainsi que les ouvertures uniques correspondantes, pour des diamètres  $d = 150, 200, 250$  et  $300$  nm. Les images MEB obtenues pour le cas  $d = 300$  nm sont reproduites dans la figure 4.8. Toutes ces structures ont été gravées dans le même film d'or qui a été préalablement déposé sur un substrat de verre. Un liquide d'indice accordé à l'indice de réfraction du verre a été ensuite déposé sur les structures pour nous permettre de travailler à nouveau dans une configuration symétrique.

À cette occasion, nous devons de souligner que le choix des paramètres expérimentaux (différents de ceux de la section précédente), a été défini après de nombreux essais préliminaires.

Durant le processus de fabrication nous avons été extrêmement vigilants afin



**Fig. 4.8** – (a) et (b) Images obtenues par microscopie électronique à balayage d'un réseau de  $40 \times 40$  trous ( $p = 430$  nm et  $d = 300$  nm) gravé dans un film d'or de 295 nm d'épaisseur. (c) Ouverture unique correspondante. Les images présentés dans les cadrans (c) et (c) sont à la même échelle. Comme nous pouvons le voir en comparant les panneaux (b) et (c), les paramètres géométriques des ouvertures sont comparables aussi bien au niveau du réseau qu'au niveau de l'ouverture unique.

d'obtenir la même qualité de gravure pour un large réseau de trous et pour une ouverture isolée. Aussi, le choix de la taille des réseaux ( $40 \times 40$  trous) fut déterminé, d'une part, de telle manière à ce que la taille des réseaux soit suffisamment grande pour que leur transmission ait atteint le régime de saturation (décrit dans la section précédente) pour les quatre diamètres considérés (tenant compte de la présence du liquide d'indice), et d'autre part, pour permettre la fabrication de structures de haute qualité dans la limite de discrétisation de la lithographie FIB. Les images MEB des structures montrent que les paramètres géométriques des structures gravées diffèrent de moins de 10 nm des valeurs spécifiées.

Notons que pour que la qualité des gravures soit particulièrement bonne et reproductible les films métalliques déposés doivent présenter des grains les plus petits possibles. Ces considérations ont privilégié la sélection de l'or comme métal pour cette étude, et la technique de la pulvérisation cathodique.

Le choix d'avoir enveloppé la structure dans un milieu diélectrique d'indice

supérieur à celui de l'air sera expliqué plus tard.

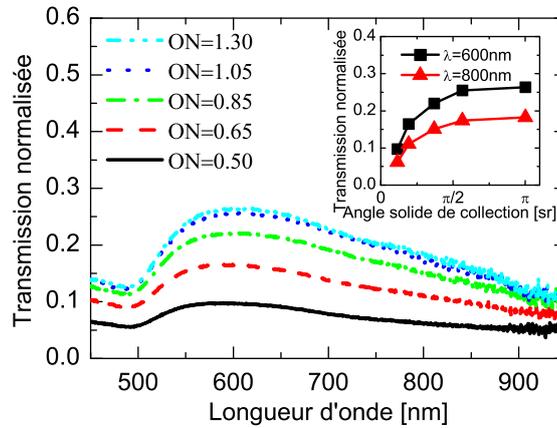
Nous définissons l'efficacité relative de la transmission exaltée comme le rapport entre la transmission d'une ouverture au sein d'un réseau et la transmission d'une ouverture isolée. Si la mesure du spectre de transmission d'un réseau de trous ne présente pas de difficulté particulière, il n'en est pas de même pour l'ouverture isolée.

#### 4.4.2 Caractérisation optique des ouvertures uniques

La caractérisation d'une ouverture unique est une tâche délicate. En effet, une ouverture sub-longueur d'onde, en tant que point source, diffracte dans tout le demi espace sur une large gamme spectrale, induisant des aberrations géométriques. Par conséquent, il est impératif de prendre un certain nombre de précautions lors de la mesure d'une ouverture unique avec un microscope pour obtenir des données correctes.

Premièrement, nous avons mesuré les spectres de transmission à différents plans focaux pour tenir compte des aberrations chromatiques. Ces données corrigées ont ensuite été confrontées aux valeurs obtenues dans des intervalles spectraux restreints (en filtrant la lumière blanche à l'aide de filtres passe-bande). Notons également que lors de la normalisation de ces mesures, nous avons tenu compte de l'étalement de la tache d'Airy associé à ces ouvertures uniques.

Un second problème résulte de la taille finie de l'angle de collection de notre montage expérimental. En effet, alors que la théorie prévoit que de telles ouvertures émettent dans tout le demi espace ( $2\pi$  sr), des études du profil d'émission angulaire indiquent que cela n'est probablement pas le cas pour des ouvertures dans des films métalliques [17, 28]. Néanmoins, afin de collecter la plus grande fraction de la lumière transmise, nous avons choisi de travailler avec un objectif à grande ouverture numérique (ON), à savoir un objectif à immersion à ON réglable (Nikon Plan Fluor 100× avec ON = 0.5 – 1.3). Cet objectif imposant l'utilisation d'une huile à immersion (d'indice de réfraction  $n = 1.53$ ) nous avons tout naturellement choisi de travailler à nouveau dans une configuration symétrique en travaillant avec un film métallique déposé sur un substrat de verre.



**Fig. 4.9** – Spectres de transmission d’une ouverture unique de 300 nm de diamètre obtenus en augmentant progressivement l’ouverture numérique de l’objectif de collection. Les résultats présentés correspondent à une moyenne effectuée sur les spectres de transmission de trois ouvertures différentes (de même diamètre) gravées dans un film d’or de 295 nm d’épaisseur. Encart : Transmission mesurée en fonction de l’angle solide de collection, évalué à 600 nm et 800 nm.

Nous avons commencé par mesurer le spectre de transmission de toutes les ouvertures uniques pour des valeurs croissantes de ON. La figure 4.9 présente uniquement les données correspondant au cas  $d = 300$  nm, les mesures effectuées pour les autres diamètres d’ouverture ayant un comportement tout à fait similaire. Pour toutes les tailles d’ouverture considérées, l’intensité de transmission collectée augmente avec l’ouverture numérique puisque nous collectons une plus grande fraction du profil d’émission angulaire de l’ouverture unique. Mais pour les grandes valeurs de ON l’intensité collectée atteint toutefois un régime de saturation (voir l’encart de la figure 4.9), indiquant que la plus grande fraction du champ transmis à alors été collectée. Cette saturation intervient lorsque la fraction de lumière collectée correspond à environ un quart de la demie sphère, ce qui correspond à environ  $\pm 40^\circ$  en bon accord avec des investigations antérieures [17,28]. Même si une augmentation de la directivité des champs diffractés est attendue lorsque  $d$  et/ou  $\varepsilon_m$  augmentent [18,23], nous avons évalué ces effets comme étant négligeables dans nos mesures.

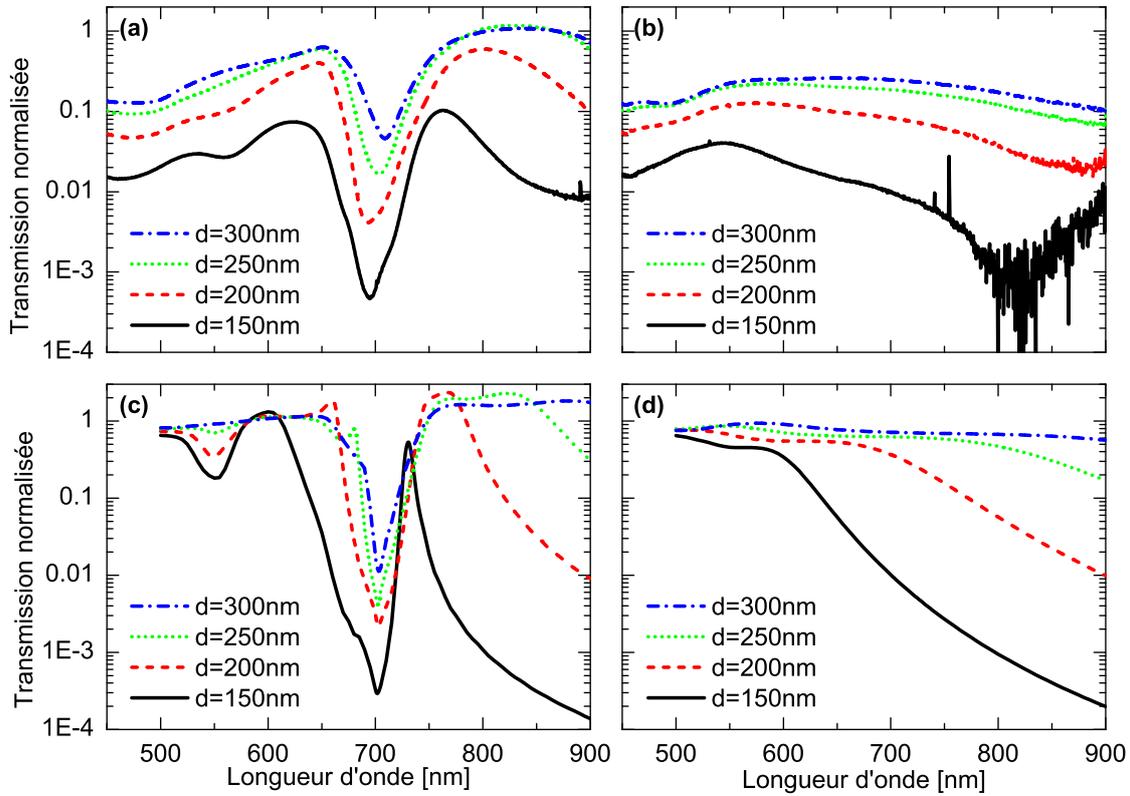
### 4.4.3 Résultats expérimentaux

Finalement, les figures 4.10(a) et (b) présentent respectivement les spectres de transmission des réseaux de trous et ceux des ouvertures uniques correspondantes. Comme nous nous y attendions, la transmission augmente globalement avec le diamètre des trous. La transmission des réseaux étant exaltée à certaines longueurs d'onde ou supprimée à d'autres longueurs d'onde en comparaison de la transmission de l'ouverture unique correspondante. Les pics de transmission des réseaux s'élargissent lorsque que le diamètre augmente comme nous l'avons observé précédemment et se déplacent vers les grandes longueurs d'onde comme il a déjà été rapporté dans la littérature [78]. Nous pouvons également remarquer que la valeur de la transmission au minimum de transmission augmente avec le diamètre indiquant une augmentation de la transmission directe à travers le réseau de trous.

Le rapport de la transmission d'un réseau sur la transmission de l'ouverture unique correspondante sur toute la gamme spectrale est présenté dans la figure 4.11 (a). Cette représentation nous permet de suivre facilement le facteur d'exaltation d'un réseau relativement à une ouverture unique. Au maximum de la résonance principale, ces facteurs d'exaltation sont approximativement 8, 12, 18 et 40 pour  $d = 300, 250, 200$  et  $150$  nm respectivement. La résonance aux plus courtes longueur d'onde, correspondant au mode (1, 1), est caractérisée par un facteur d'exaltation beaucoup plus faible, principalement lié au fait que l'or devient de moins en moins favorable aux PS lorsque la longueur d'onde diminue, comme nous l'avons discuté dans le chapitre 3. Rappelons également qu'en dessous d'environ 500 nm l'or ne peut plus soutenir de mode PS à cause de la valeur de sa constante diélectrique.

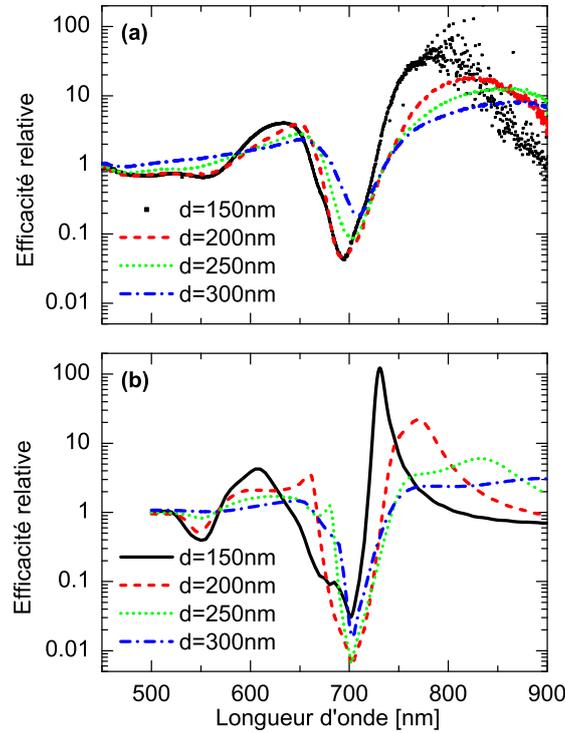
Les résultats théoriques présentés dans les figures 4.10(c), 4.10(d) et 4.11(b) montrent un excellent accord avec les résultats expérimentaux. Précisons que pour ces calculs nous avons considéré que les trous étaient remplis par un milieu diélectrique d'indice de réfraction  $n = 1.53$ .

Nous pouvons également remarquer sur la figure 4.11 qu'en dehors des résonances plasmoniques des réseaux de trous, le rapport des transmissions est proche de l'unité et qu'il est essentiellement indépendant du diamètre de l'ouverture, attestant de la consistance des mesures et des calculs. Au contraire, à la longueur d'onde de résonance, le facteur d'exaltation augmente lorsque le diamètre diminue, en ac-



**Fig. 4.10** – (a) et (b) Respectivement les spectres de transmission d'un réseau de  $40 \times 40$  trous ( $p = 430$  nm) et d'une ouverture unique, pour des diamètres d'ouvertures croissants ( $d = 150, 200, 250$  et  $300$  nm). Toutes les structures ont été gravées dans le même film d'or de  $295$  nm d'épaisseur qui a été déposé sur un substrat de verre puis recouvert par un liquide d'indice ( $n = 1,53$ ). L'augmentation de la transmission et du bruit dans la limite des grandes longueurs d'onde, visible principalement sur le spectre de la plus petite ouverture unique ( $d = 150$  nm), correspond au seuil de détection de notre montage expérimental, ce bruit augmente typiquement avec la longueur d'onde. Pour toutes les structures, la lumière transmise a été collectée en utilisant le même objectif (Nikon Plan Fluor  $100\times$ ) avec une ouverture numérique fixée à  $1.3$ . Les courbes relatives aux ouvertures uniques sont une moyenne effectuée sur les spectres de transmission de trois ouvertures différentes. (c) et (d) Résultats théoriques correspondant aux expériences. Tous les spectres sont présentés en échelle logarithmique.

cord avec l'augmentation de la propagation des PS discutée précédemment. Ces mesures confirment à nouveau l'importance des PS dans le phénomène de transmission exaltée.



**Fig. 4.11** – (a) Rapport entre la transmission d’un réseau et la transmission d’une ouverture unique correspondante, pour  $d = 150, 200, 250$  et  $300$  nm. (b) Résultats théoriques correspondant aux mesures expérimentales. Toutes les données sont présentées en échelle logarithmique.

## 4.5 Conclusion

Lorsque que nous comparons la transmission d’un réseau de trous sub-longueurs d’onde aux premières prédictions théoriques, tels les travaux de Bethe [5], le phénomène de transmission exaltée donne lieu à des transmissions excédant de plusieurs ordres de grandeurs celle d’une ouverture unique. Seulement, ces premières études théoriques ne prenaient pas en compte les résonances de transmissions observées expérimentalement pour une ouverture unique dans un film métallique d’épaisseur finie [27, 28, 30].

De telles résonances sont désormais reproduites par les simulations numériques, et sont attribuées à des modes plasmon localisés [20, 21] ou à des modes guidés [24–26]. La présence de résonances dans le spectre de transmission d’une ouverture unique pouvant d’ores et déjà exalter la transmission à une longueur d’onde donnée, l’exaltation d’un réseau est également dépendante de la forme de l’ouverture [19,

27, 28, 30]. L'exaltation de la transmission d'un réseau relativement à celle d'une ouverture unique est de ce fait totalement dépendante de facteurs géométriques et est par conséquent également fonction de la longueur d'onde (comme nous l'avons discuté dans le chapitre 3).

Dans ce contexte, nos mesures montrent clairement que la présence de résonances plasmoniques bien définies, reliées à la périodicité du réseau, exaltent davantage la transmission d'un à deux ordres de grandeur. La plus grande exaltation est obtenue lorsque la taille du réseau est supérieure à la longueur de propagation maximale des PS (atteignable sur un réseau infini ayant les mêmes caractéristiques).

Dans cette limite, l'efficacité relative de la transmission exaltée d'un réseau par rapport à une ouverture unique augmente lorsque le diamètre des ouvertures diminue, conformément à l'augmentation de la longueur de propagation des PS à la surface du réseau.

Nous avons également observé que les réseaux ne réémettent pas uniformément la lumière. Leurs profils d'émission sont fortement marqués par la direction et la longueur de propagation finie des PS. Plus surprenant, nous avons remarqué qu'ils sont particulièrement sensibles à l'angle d'incidence de la lumière.

Tous ces effets, liés à la taille finie du réseau ainsi qu'à la longueur de propagation finie des PS, sont à prendre en compte dans le cas d'applications pratiques, tant au niveau du « design » du réseau qu'au niveau de l'interprétation des données.

# Chapitre 5

## Organisations aléatoires et quasipériodiques d'ouvertures

### 5.1 Introduction

Les surprenantes propriétés optiques des réseaux de trous dans les films métalliques proviennent de l'excitation de modes de plasmon de surface (PS) bien définis. À incidence normale, lorsque la structure est illuminée par un faisceau d'ondes planes, les modes de transmission optique exaltée sont déterminés par la loi de conservation des impulsions  $\mathbf{k}_{\text{PS}} = \mathbf{G}$ , entre le vecteur réciproque du réseau périodique  $\mathbf{G}$  et le vecteur d'onde des PS sur une interface plane  $\mathbf{k}_{\text{PS}}$ .

Par conséquent, la notion de périodicité (de laquelle découle la définition de l'espace réciproque d'une structure cristalline) et la notion associée de symétrie spatiale apparaissent essentielles dans le processus d'excitation et de contrôle des résonances PS à la surface du réseau.

Dans un premier temps, nous nous intéresserons aux arrangements aléatoires de trous. Bien que leurs propriétés optiques soient très proches de celles d'une ouverture isolée dans la limite d'une faible densité surfacique de trous, nous remarquerons qu'une augmentation de la densité de trous dans le réseau aléatoire conduit inévitablement à la création d'un ordre à courte portée, marquant distinctement le spectre de transmission. Conformément à nos attentes, ces signatures optiques seront toutefois moins bien définies en comparaison des pics de transmission exaltée observés dans le cadre de structures périodiques, montrant l'importance de l'ordre à longue portée dans le phénomène de transmission exaltée.

Nous étudierons alors un arrangement plus subtil de l'espace, possédant un ordre à longue portée mais échappant aux contraintes de la périodicité : les quasicristaux. Nous nous intéresserons spécifiquement au motif découvert par Penrose [114]. Nous verrons que contrairement aux motifs aléatoires ces réseaux possèdent des pics de transmission exaltée bien définis. Toutefois la perte de périodicité stricte modifiera la dynamique de propagation des PS à la surface de la structure, diminuant l'efficacité du phénomène de transmission exaltée par rapport au cas des réseaux parfaitement périodiques.

## 5.2 Motif aléatoire

Les arrangements aléatoires de trous ont été largement utilisés expérimentalement dans le but de séparer les effets liés à la périodicité des effets associés aux ouvertures dans le phénomène de transmission exaltée [27, 30, 46, 115–117]. Pourtant, il n'est pas évident que les propriétés optiques d'un réseau aléatoire puissent être considérées comme étant la somme des contributions indépendantes d'ouvertures uniques isolées. Peu d'études ont en fait réellement comparé le spectre de transmission d'une ouverture unique à celui d'un réseau aléatoire [29, 118]. Nous nous proposons donc de compléter ces premières investigations en comparant dans un premier temps expérimentalement les propriétés optiques d'une ouverture isolée à celles de réseaux aléatoires. Cette comparaison nous conduira dans un second temps à étudier les effets liés à la présence d'ordre à courte portée dans les réseaux aléatoires les plus denses.

### 5.2.1 Protocole expérimental

Nous avons fabriqué des réseaux de trous aléatoires en disposant au hasard des ouvertures dans une fenêtre carrée d'environ  $13 \times 13 \mu\text{m}^2$ . Afin d'éviter le recouvrement entre deux trous distincts, nous avons ajouté une contrainte qui impose une séparation minimale  $m$  (de centre à centre) entre les ouvertures composant le motif. Compte tenu du profil légèrement émoussé des ouvertures gravées par lithographie FIB (voir par exemple les coupes longitudinales de la figure 3.1) et des conditions expérimentales particulières à cette étude, il est nécessaire d'avoir une séparation de bord à bord entre deux trous d'au moins 75 nm pour qu'ils soient parfaitement dis-

sociés. Par mesure de précaution, nous avons choisi une valeur minimale légèrement supérieure, égale à environ 90 nm (pour un diamètre d'ouverture  $d = 160$  nm, cela correspond à une valeur minimale de  $m$  égale à 250 nm).

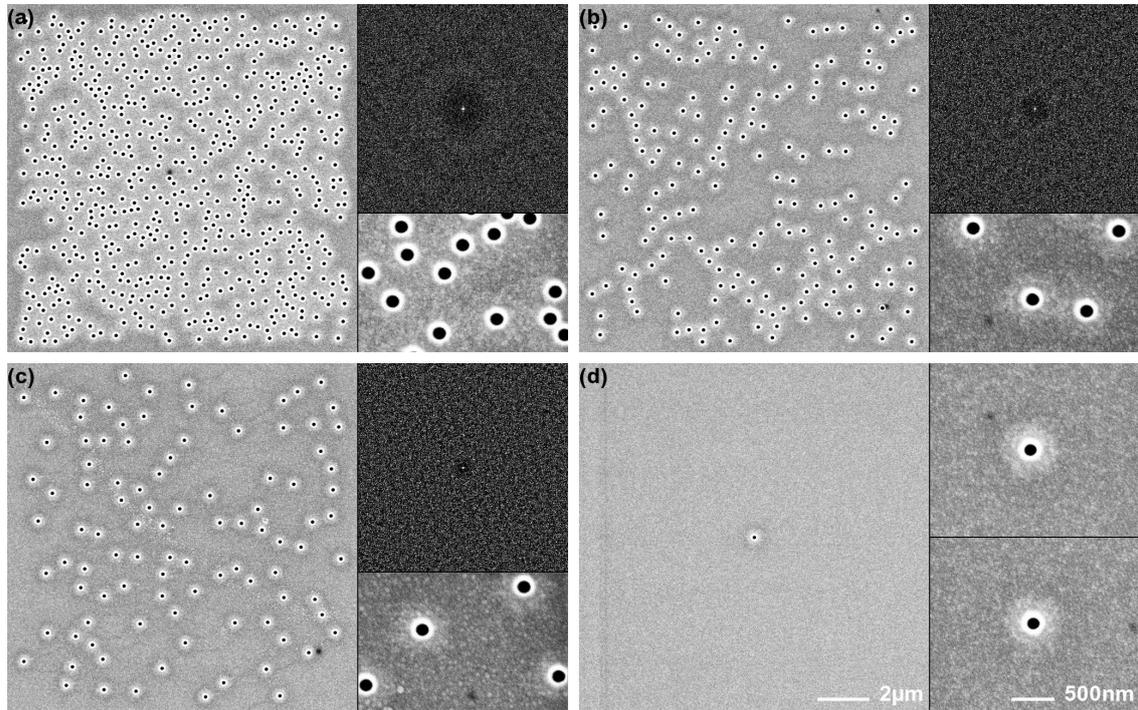
Un autre paramètre essentiel intervient dans la construction d'un réseau aléatoire : la densité moyenne  $\rho$  d'ouverture par unité de surface. Ce paramètre est critique lors de la construction d'un motif aléatoire puisqu'en cherchant à obtenir un arrangement compact d'ouvertures l'on induit nécessairement un certain ordre dans le système. Cette propriété, qui correspond à la notion d'ordre à courte portée, apparaît dans de nombreux arrangements denses mais non cristallins de la matière tel que les solides amorphes, les verres et la plupart des liquides [119, 120].

## 5.2.2 Comparaison du spectre de transmission d'un réseau aléatoire à celui d'une ouverture unique

Dans un premier temps, nous avons voulu minimiser la création d'ordre à courte portée dans les réseaux aléatoires. Pour cela nous avons choisi la densité des réseaux aléatoires de telle sorte qu'elle soit environ égale à un tiers de la densité maximale atteignable dans une fenêtre carrée déterminée, limitée par la contrainte  $m$ . L'uniformité des transformées de Fourier des arrangements générés, dont certaines sont incluses dans la figure 5.1, permet de vérifier qu'effectivement aucune fréquence spatiale particulière ne ressort.

Nous avons fabriqué des réseaux aléatoires composés de trous identiques de diamètre  $d = 160$  nm, gravés dans un même film d'or de 275 nm d'épaisseur déposé sur substrat de verre (voir figure 5.1). Les structures ont ensuite été recouvertes par un liquide d'indice ajusté à celui du verre. Leur spectre de transmission ont été mesurés en utilisant le protocole expérimental décrit dans la section 4.4, bien que dans la gamme de  $\rho$  choisie les spectres des arrangements aléatoires se soient avérés moins sensibles aux aberrations chromatiques que dans le cas d'ouvertures uniques.

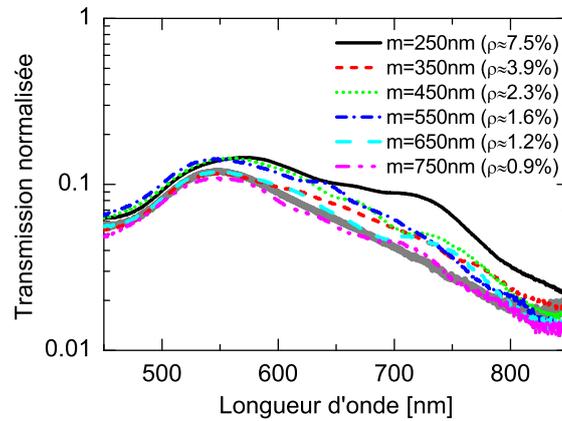
La figure 5.2 présente les spectres de transmission de réseaux aléatoires générés pour des valeurs croissantes de la contrainte  $m$  (possédant une densité  $\rho$  décroissante). Sur cette figure, nous avons également reporté le spectre de transmission d'une ouverture unique gravée dans le même film que les réseaux aléatoires (ligne grise épaisse) et possédant strictement les mêmes caractéristiques géométriques que les



**Fig. 5.1** – Vues par microscopie électronique à balayage (MEB) de réseaux aléatoires générés pour différente valeur de la distance minimale entre les ouvertures  $m$  : **(a)**  $m = 250$  nm ( $\rho \approx 7.5$  %), **(b)**  $m = 450$  nm ( $\rho \approx 2.3$  %) et **(c)**  $m = 650$  nm ( $\rho \approx 1.2$  %). La densité de trous par unité de surface ( $\rho$ ) a été choisie comme étant égale à un tiers du maximum autorisé par les contraintes imposées par  $m$ . Les ouvertures ont toutes le même diamètre ( $d = 160$  nm). Les transformées de Fourier numériques des arrangements aléatoires sont également représentés. L'échelle et le contraste sont identiques dans les différentes images. **(d)** Images d'ouvertures uniques fabriquées dans le même film d'or ( $t = 275$  nm), possédant des paramètres géométriques identiques à ceux des trous composant les réseaux aléatoires ( $d = 160$  nm). L'anneau blanc qui entoure les ouvertures sur les images MEB est dû au profil légèrement émoussé des ouvertures.

trous composant les motifs aléatoires (voir figure 5.1).

Comme nous l'attendions, le spectre de transmission des réseaux aléatoires ne possède pas de résonances clairement définies. La réponse optique des arrangements aléatoires reste proche de celle de l'ouverture unique, en particulier pour les plus grandes valeurs de la séparation  $m$  (voir le spectre  $m = 750$  nm sur la figure 5.2). Dans ce cas, la transmission d'un réseau aléatoire peut alors être considérée comme étant la somme des contributions indépendantes d'ouvertures uniques isolées.



**Fig. 5.2** – Spectres de transmission de réseaux de trous aléatoires pour des valeurs croissantes de la distance minimale entre les trous ( $m$ ). Ces données correspondent aux paramètres géométriques présentés dans la figure 5.1. Le spectre de transmission d'une ouverture unique possédant les mêmes paramètres que les trous composant les réseaux est également représenté (ligne grise épaisse). Tous les spectres ont été obtenus en suivant le protocole décrit dans la section 4.4 et sont normalisés par rapport à l'aire occupée par les trous. Le spectre de l'ouverture unique correspond à la moyenne du spectre de deux trous isolés différents (voir figure 5.1(d)).

Remarquons toutefois les petites modulations sur les spectres des réseaux aléatoires, absentes du spectre de l'ouverture unique. Ces déviations indiquent une interaction non négligeable entre les trous composant le motif aléatoire. L'écart entre le spectre de l'ouverture unique et celui du réseau aléatoire semble se creuser lorsque  $m$  diminue.

Des modulations similaires sont visibles sur les spectres de réseaux aléatoires présentés dans d'autres études [27, 30, 118]. Une étude théorique [118] comparant le spectre de réseau aléatoire à celui d'une ouverture unique a attribué ces modulations à des résonances locales entre des ouvertures adjacentes. Cette conclusion s'appuie notamment sur des expériences qui ont montrées que deux ouvertures percées dans un film métallique peuvent interagir en champ proche via les PS [121], ce qui a été démontré comme influençant leur transmission globale [122, 123].

Remarquons que le spectre  $m = 250$  nm qui présente les plus fortes déviations correspond à la structure qui est aussi la plus dense. Cette densité commence à être suffisamment élevée pour contraindre le tirage aléatoire des trous dans la surface

fixée du réseau. Cet effet de contrainte se manifeste par l'apparition d'une information spatiale que l'on commence à pouvoir identifier dans le spectre Fourier associé. C'est cette information qui définit probablement le léger épaulement sur le spectre correspondant à  $m = 250$  nm sur la figure 5.2.

### 5.2.3 Ordre à courte portée

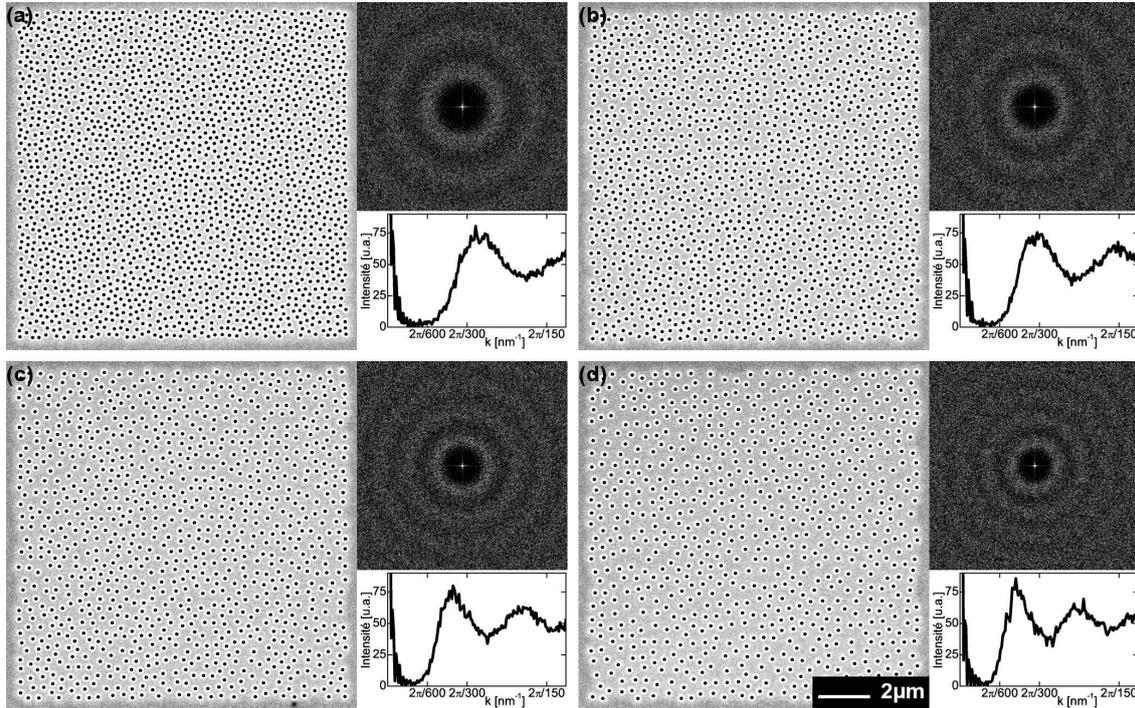
Comme nous l'introduisons au début de ce chapitre, des fortes valeurs de  $\rho$  peuvent induire l'apparition d'un ordre à courte portée dans le système. Afin de mettre en évidence les effets liés à la présence d'un tel ordre et en particulier caractériser l'épaulement observé sur la figure 5.2 pour  $m = 250$  nm, nous avons généré des réseaux aléatoires avec une densité maximale de trous, tout en respectant les contraintes imposées par  $m$ . De cette façon nous allons pouvoir suivre spectralement l'effet de cette contrainte pour plusieurs valeurs de  $m$ .

Des images typiques de réseaux aléatoires fabriqués sont présentés dans la figure 5.3. Sur cette même figure nous retrouvons également les transformées de Fourier (TF) des arrangements générés. Celles-ci font clairement ressortir, sous la forme d'anneaux concentriques, l'ordre induit par la forte densité imposée au système.

Comme nous pouvons le voir sur les coupes radiales, également représentées sur la figure 5.3, la fréquence associée à ces sur-intensités spectrales correspond bien au paramètre  $m$ . Notons que l'intensité spectrale maximale visible sur les TF correspond en fait à une longueur légèrement supérieure à  $m$  (décalage constant d'environ 15 nm).

La figure 5.4 rassemble les spectres des différents arrangements aléatoires compacts fabriqués. Pour  $m = 250$  nm, nous retrouvons aux alentours de 650 nm l'épaulement que nous observions précédemment sur la figure 5.2. Plus remarquable, la position de cet épaulement évolue avec  $m$ . Une analyse des données suggère une évolution linéaire de la position de cette résonance avec  $m$ . Lorsque  $m$  excède 450 nm nous n'observons plus de résonance clairement définie mais plutôt des modulations semblables à celles observées sur la figure 5.2.

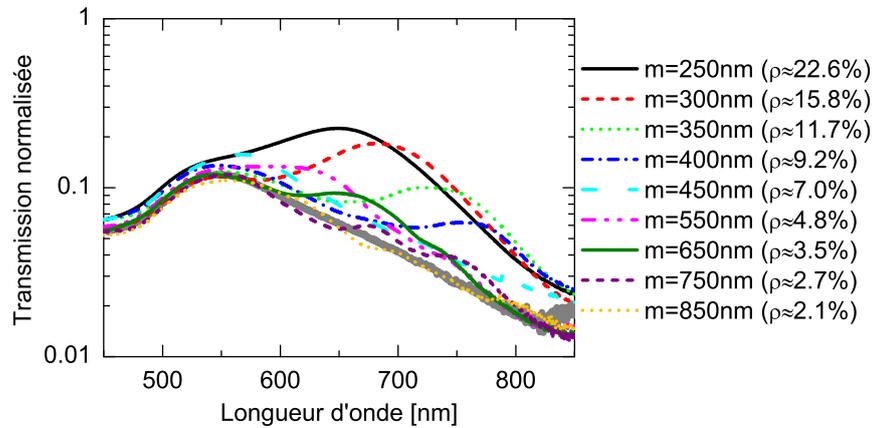
En s'inspirant des systèmes périodiques, pour lesquels le facteur de structure détermine les différentes résonances plasmoniques, nous relierons la structure spectrale



**Fig. 5.3** – Vues par microscopie électronique à balayage de réseaux aléatoires générés pour différente valeur de la distance minimale entre les ouvertures  $m$  : **(a)**  $m = 250$  nm ( $\rho \approx 22.6\%$ ), **(b)**  $m = 300$  nm ( $\rho \approx 15.8\%$ ), **(c)**  $m = 350$  nm ( $\rho \approx 11.7\%$ ) et **(d)**  $m = 400$  nm ( $\rho \approx 9.2\%$ ). La densité de trous par unité de surface a été maximisée dans la limite des contraintes imposées par  $m$ . Les ouvertures ont toutes le même diamètre ( $d = 160$  nm). Les transformées de Fourier (TF) numériques des arrangements aléatoires sont également représentées. Ces images permettent d'identifier un ordre à courte portée dans les motifs (anneaux concentriques). Les coupes radiales moyennes permettent de visualiser facilement les fréquences des premiers anneaux, qui correspondent clairement au paramètre  $m$ . L'échelle et le contraste des TF sont identiques aux TF présentées sur la figure 5.2.

de la TF des arrangements aléatoires compacts à leurs propriétés optiques bien définies. Plus précisément, en généralisant la relation 1.10 (relation de couplage aux PS) nous avons identifié la fréquence spatiale dominant la TF (correspondant environ à  $2\pi/m$ ) à la fréquence des résonances optiques.

La figure 5.5 compare l'évolution expérimentale de la position de l'épaulement en fonction de  $m$  à celle déduite à partir d'une analyse de la TF des arrangements aléatoires. Même si la gamme spectrale reste faible, nous remarquons que l'épaulement semble suivre la même tendance que celle observée dans le cas de

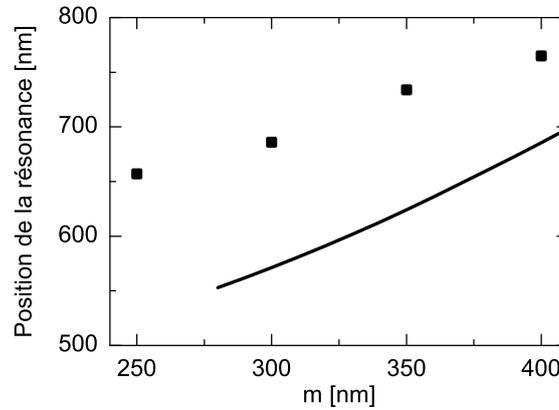


**Fig. 5.4** – Spectres de transmission de réseaux de trous aléatoires pour des valeurs croissantes de la distance minimale entre les trous ( $m$ ). Ces données correspondent aux paramètres géométriques présentés dans la figure 5.3 (réseaux avec une densité maximale de trous). Le spectre de transmission d’une ouverture unique possédant les mêmes paramètres que les trous composant les réseaux est également représenté (ligne grise épaisse). Tous les spectres ont été obtenus en suivant le protocole décrit dans la section 4.4 et sont normalisés par rapport à l’aire occupée par les trous.

réseaux périodiques (voir section 3.3).

Afin d’obtenir plus de détails sur la dynamique de ces résonances il est également intéressant d’étudier l’évolution des spectres de transmission en fonction du nombre de trous  $N$  pour une densité et une distance minimale entre les ouvertures fixées. Pour cela, nous avons fabriqué et caractérisé des réseaux aléatoires couvrant une fenêtre carrée de taille croissante (composé de ce fait d’un nombre croissant d’ouvertures).

Les spectres de transmission de ces structures de tailles croissantes ont été reportés dans la figure 5.6. Nous constatons que le spectre de transmission du motif aléatoire n’évolue globalement pas lorsque le nombre de trous augmente. Les seules fluctuations d’intensité sont attribuées à des variations locales de la densité de trous dans les motifs aléatoires dont nous n’avons pas tenu compte dans notre normalisation. En effet lors des mesures nous analysons uniquement la lumière transmise par une fraction des structures, limitée par la dimension de la fente d’entrée du spectromètre (voir section 2.4). Cette fente intercepte uniquement une tranche du

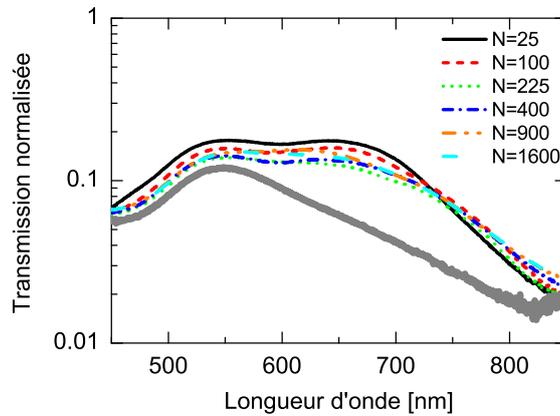


**Fig. 5.5** – Évolution de la position de la résonance observée expérimentalement sur le spectre de transmission de réseaux aléatoires compacts en fonction de la distance minimale entre les ouvertures ( $m$ ). Ces données sont comparées aux positions estimées à partir de la structure spectrale de la transformée de Fourier des structures aléatoires (ligne continue).

réseau. Par conséquent la zone mesurée est proportionnelle à la taille du réseau et, de ce fait, l'intensité du spectre de transmission des plus petits motifs aléatoires est particulièrement sensible aux variations locales de la densité de trous qui ne sont pas moyennées sur une grande surface, comme elles le sont pour les grandes valeurs de  $N$ .

Lorsque  $N$  augmente, nous remarquons que l'intensité du spectre converge vers une valeur moyenne, ainsi les deux plus grands réseaux aléatoires ( $N = 900$  et  $N = 1600$  ouvertures) ont globalement le même spectre de transmission. Ces différentes structures de même densité étant générées indépendamment, cette similitude confirme de nouveau que la forme du spectre est principalement déterminée par les paramètres  $m$  et  $\rho$ .

La constance de l'amplitude de transmission en fonction du nombre de trous est intéressante. En effet, dans le cas des structures périodiques, nous avons noté que l'amplitude des résonances spectrales associées à la périodicité croissait avec le nombre de trous, pour saturer dans la limite des grands réseaux (voir section 4.3.3). Cette évolution est directement liée à la nature délocalisée des modes PS excités à la surface du réseau périodique. Pour les réseaux aléatoires, au contraire, la modulation spectrale que nous avons associée à l'ordre à courte portée de la structure (structure du spectre Fourier) ne varie pas avec le nombre de trous, indiquant la



**Fig. 5.6** – Spectres de transmission de réseaux de trous aléatoires composés d'un nombre croissant de trous ( $N$ ) de diamètre constant  $d = 160$  nm. La densité moyenne de trous par unité de surface a été maintenue constante ( $\rho \approx 10.6$  %) avec une distance minimale entre les trous  $m = 250$  nm. Notons que chacun des réseaux aléatoires de cette figure est issue d'un tirage indépendant. Le spectre de transmission de l'ouverture unique correspondante est également représenté (ligne grise épaisse).

nature peu délocalisée des modes PS excités dans ce cas\*. En particulier, cette conclusion s'accorde bien avec l'origine de l'épaulement autour de 650 nm que nous avons attribué à l'ordre à courte portée présent dans les arrangements aléatoires les plus denses.

Comme nous pouvons le voir sur le spectre Fourier des arrangements aléatoires les plus denses (voir figure 5.3), la signature de cet ordre reste toutefois imprécise en comparaison des pics de Bragg associés à l'ordre à longue portée caractérisant les structures périodiques. Dans le cas de réseaux périodiques, l'ordre à longue portée devient de mieux en mieux défini lorsque le nombre de trous augmente, par contre dans le cas de réseaux aléatoires l'ordre à courte portée devient de mieux en mieux défini lorsque la densité de trous augmente. La densité de trous maximale étant déterminée par  $m$ , la définition de l'ordre à courte portée reste évidemment limitée, empêchant l'excitation efficace de PS par la structure.

Les résonances observées sur les spectres de transmission des réseaux aléatoires compacts restent donc mal définies et ne présentent pas les caractéristiques mar-

\*Une autre manière de le vérifier aurait été de mesurer la relation de dispersion de réseaux aléatoires [30].

quées des pics de transmission exaltée mesurés dans le cas de réseaux périodiques (minima prononcés et dissymétries des profils de résonance). Par contre, l'évolution de la position de cette résonance, avec la distance moyenne entre les ouvertures, semble similaire à la variation de la position du pic avec la période dans les réseaux périodiques. Ceci indique bien la généralité de l'analyse Fourier pour prévoir les propriétés optiques d'un réseau de trous.

Nos mesures ont mis en évidence l'influence des interactions entre trous dans un réseau aléatoire. Dans le contexte de la mesure des propriétés de transmission d'ouvertures uniques, il n'est donc pas évident que la mesure de la transmission à travers un réseau aléatoire permette de remonter à celle de l'ouverture unique. Notre discussion définit les précautions à prendre pour pouvoir le faire. On remarquera que les études qui ont explorées la réponse optique d'ouverture unique, en analysant celle de réseaux aléatoires [27, 30], ont judicieusement choisi des faibles densités de trous.

D'autres mesures obtenues en microscopie en fond noir [29] avaient déjà remarqué que la position de la résonance associée au mode PSL d'une ouverture unique est affectée par la distance moyenne entre les autres ouvertures dans un réseau aléatoire. On notera cependant qu'il est difficile dans ces mesures de séparer l'effet d'un ordre à courte portée induit sur leurs structures aléatoires de l'effet de la réponse de l'ouverture unique.

### 5.3 Quasipériodicité

Les spectres de réseaux aléatoires de trous peuvent sous certaines conditions exhiber des résonances attribuées à un ordre à courte portée. Néanmoins, celles-ci restent moins bien définies que dans le cas de réseaux périodiques. Dans ce cas, l'ordre à grande échelle parfait qui les caractérise (invariance par translation) permet l'excitation de modes PS se propageant sur plusieurs périodes, collectant efficacement l'énergie à la surface de la structure.

Une périodicité stricte est-elle réellement nécessaire pour observer de tels effets optiques très résonants? Pour répondre à cette question nous avons fabriqué des réseaux de trous suivant un motif de type Penrose, un type de quasicristal.

### 5.3.1 Introduction

Le terme « quasicristal » a été introduit en 1984 par Levine et Steinhardt [124] dans le contexte de la découverte majeure de Shechtman *et al.* [125] publiée cette même année. Ces derniers ont en effet mis en évidence des alliages à base d'aluminium et de manganèse rapidement solidifiés présentant une structure cristalline de symétrie d'ordre 5. L'originalité de ces cristaux réside dans le fait que la symétrie d'ordre 5 est connue depuis Bravais comme étant incompatible avec l'invariance par translation et donc la notion de périodicité.

Les cristaux quasipériodiques (quasicristaux) furent dès lors établis comme représentant un ordre géométrique à part entière. Leurs propriétés physiques uniques, induites par cette nouvelle organisation de l'espace, ont été largement étudiées en physique des solides [120]. Récemment l'intérêt pour les systèmes quasipériodiques s'est étendu au domaine de la photonique [126–131].

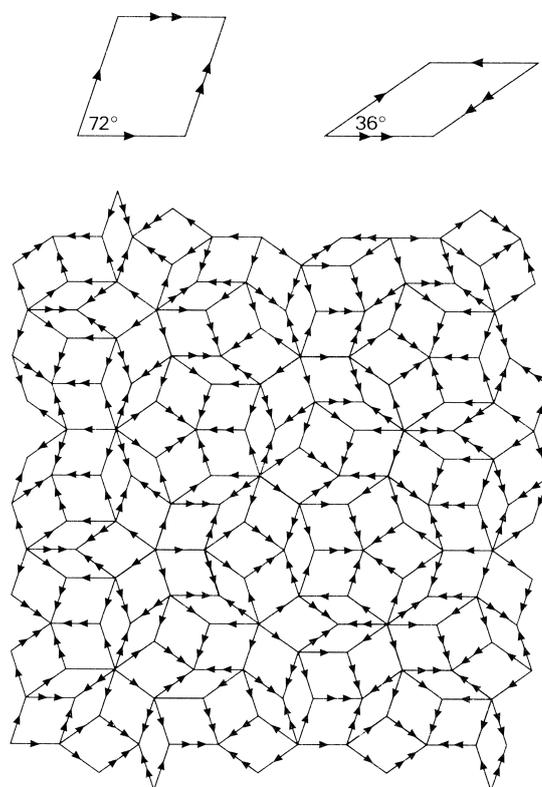
La notion de quasipériodicité n'était pourtant pas étrangère aux mathématiciens. Les fonctions « presque périodiques » étaient en effet déjà introduites au début du XX<sup>e</sup> siècle [132]. Par la suite, en s'inspirant des mosaïques de l'architecture médiévale islamique, Penrose découvrit une méthode de construction capable de paver totalement le plan de manière strictement non périodique [114]. Ce n'est que plus tard que ce pavage fut identifié comme étant quasipériodique, devenant alors l'archétype du quasicristal<sup>†</sup>.

### 5.3.2 Le pavage de Penrose

Le pavage de Penrose est construit selon la symétrie du pentagone, qui comme nous l'introduisons précédemment est pourtant incompatible avec l'invariance par translation. Néanmoins, l'emploi d'un jeu de tuiles élémentaires adéquates, couplé à des règles de construction appropriées permet de surmonter les contraintes imposées par la périodicité. Le maintien d'un ordre à longue portée par les règles de construction permet de remplir parfaitement le plan avec un fort ordre d'orientation qui peut être de symétrie interdite (pour le pavage de Penrose la symétrie d'ordre 5). De part cet ordre à longue portée, le pavage non périodique obtenu est alors en

---

<sup>†</sup>Remarquablement, des motifs quasipériodiques presque parfaits, semblables à ceux découverts par Penrose, furent récemment identifiés dans des fresques vieilles de cinq siècles [133], contemporaines des mosaïques ayant inspirées originellement Penrose.



**Fig. 5.7** – (D’après [120]) Pavage de Penrose possédant une symétrie d’ordre 5 construit à partir de deux types de losanges. Les flèches sur les cotés des losanges illustrent les règles d’assemblages.

fait quasipériodique.

Les quasicristaux que nous avons choisi d’étudier sont composés de deux types de losanges. Ceux-ci ont des côtés de même longueur  $a_2$  mais des angles internes différents (voir figure 5.7). Le losange « fin » possède un angle de  $36^\circ$  et le losange « épais » un angle de  $72^\circ$ . Ces angles ont été choisis de telle manière à paver l’espace avec une symétrie spatiale d’ordre 5. Le schéma de la figure 5.7 permet d’apprécier cette originalité. Nous pouvons en effet remarquer que tous les côtés des losanges composant le pavage sont orientés perpendiculairement aux axes de symétrie d’un pentagone. Notons que ces valeurs d’angles font intervenir le nombre d’or  $\tau$  ( $\cos(\pi/5) = \tau/2$ ), nombre irrationnel intimement lié au pavage Penrose [134].

Le simple emploi de ces tuiles n’est toutefois pas suffisant pour obtenir un arran-

gement quasipériodique. L'utilisation de règles d'assemblages précises est nécessaire pour forcer la quasipériodicité; sans quoi l'obtention d'un nombre infini d'arrangement allant de structures périodiques à différents motifs aléatoires serait possible [120]. Ces lois de construction sont illustrées sur la figure 5.7. Elles apparaissent sous forme de flèches placées sur les bords des losanges, imposant à deux tuiles adjacentes d'avoir leur côté commun marqué identiquement (contrainte d'orientation).

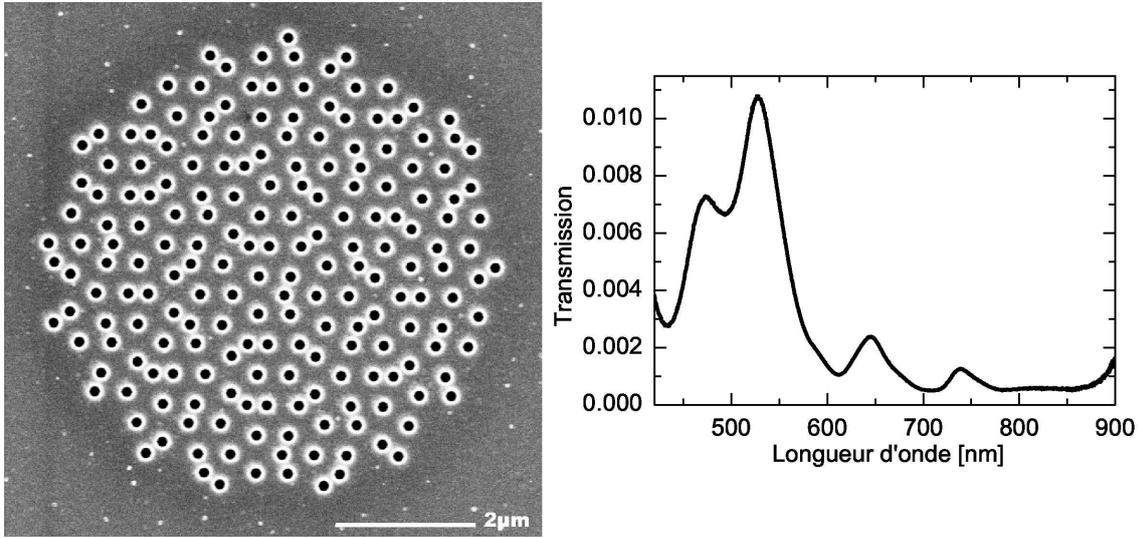
Au cours de cette étude, nous nous sommes intéressés spécifiquement à ce motif car il est le plus simple et le plus symétrique des quasicristaux. Il possède le plus petit ordre de symétrie incompatible avec la périodicité.

### 5.3.3 Spectre de transmission d'un réseau de trous de type Penrose

Nous avons fabriqué des réseaux de trous quasipériodiques en agençant des trous selon un pavage Penrose. Précisément, nous avons gravé une ouverture à chaque sommet des losanges composant un pavage Penrose. La figure 5.8 présente un exemple de structure gravée.

Sur cette figure nous pouvons également trouver le spectre de transmission typique des réseaux quasipériodiques fabriqués. Ces spectres de transmission sont remarquables, dans le sens où ils possèdent des pics de transmission exaltée bien définis, malgré le fait que la notion de périodicité au sens stricte du terme soit absente dans le pavage Penrose.

De la même manière que pour le cas des arrangements aléatoires compacts, en se souvenant que dans le cas de réseaux périodiques les résonances optiques sont définies par la loi de conservation des impulsions, il devient intéressant de se tourner vers la transformée de Fourier du pavage Penrose. Le spectre de diffraction typique des réseaux Penrose est présenté dans la figure 5.9. Cette transformée de Fourier optique met à jour une propriété caractéristique des quasicristaux : leur spectre de diffraction est composé d'une série de pics de Bragg qui remplissent densément l'espace réciproque de manière dénombrable, non fractale [134]. Cette propriété empêche la définition d'un vecteur réciproque fondamental, nécessaire pour indexer les différentes résonances associées à la structure, comme c'était le cas pour les

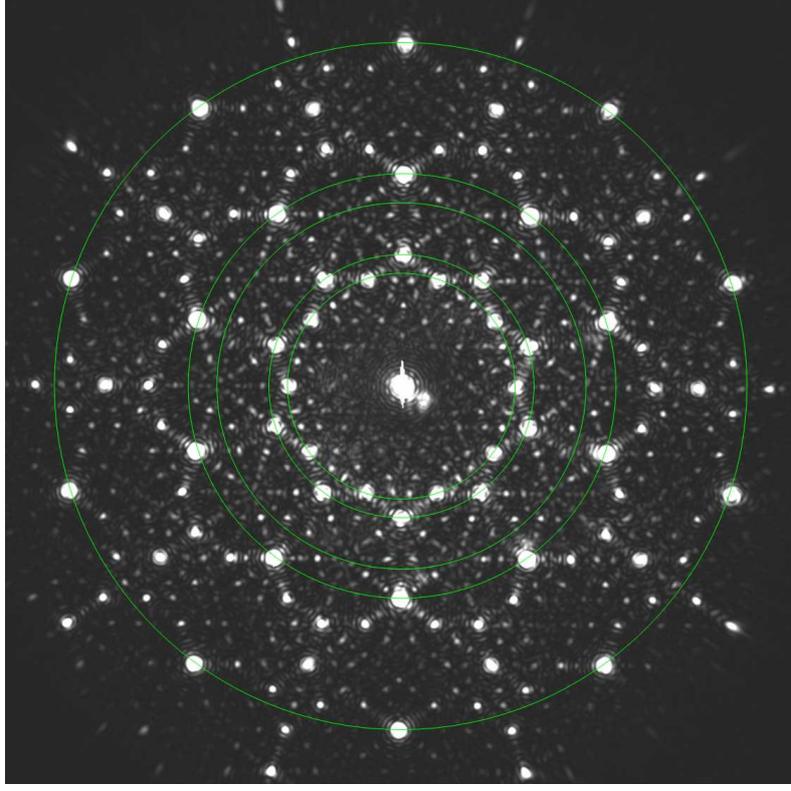


**Fig. 5.8** – Image obtenue par microscopie électronique à balayage d'un réseau de trous organisé selon un pavage de Penrose. Le pavage a été construit à partir de losanges de côté  $a_2 = 450$  nm, au sommet desquels un trou de diamètre  $d = 150$  nm a été gravé à travers 300 nm d'argent déposé sur un substrat de verre. Le spectre de transmission correspondant à cette structure est également représenté.

réseaux périodiques. Nous remarquons néanmoins que le spectre de Fourier du pavage Penrose possède des pics de diffraction plus intenses que d'autres. Il se trouve que les fréquences de ces pics dominant peuvent être reliées à l'inverse de certaines longueurs élémentaires présentes dans la structure [132, 135], permettant un indexage pratique des différents pics de transmission.

Dans l'espace réel le pavage Penrose est composé de cinq longueurs de base  $a_{i=1,\dots,5}$  de longueurs croissantes :  $a_1$  la courte diagonale du losange « fin » ( $a_1 \approx 0.618 a_2$ ),  $a_2$  la longueur du côté des losanges,  $a_3$  la courte diagonale du losange « épais » ( $a_3 \approx 1.18 a_2$ ),  $a_4$  la longue diagonale du losange « épais » ( $a_4 \approx 1.618 a_2$ ) et enfin  $a_5$  la longue diagonale du losange « fin » ( $a_5 \approx 1.9 a_2$ ). Par construction, ces cinq longueurs élémentaires génèrent une symétrie de rotation d'ordre 5 (symétrie décagonale du spectre de diffraction du pavage Penrose).

En considérant ces propriétés, nous pouvons définir des jeux de vecteurs réciproques « pratiques »  $\alpha^n$ , déterminant d'hypothétiques réseaux réciproques possédant la symétrie décagonale du pavage de Penrose (basés sur chacune des longueurs élé-



**Fig. 5.9** – Transformée de Fourier optique d'un réseau Penrose. Il s'agit en fait du spectre de diffraction à l'infini d'un réseau Penrose illuminé par un faisceau laser ( $\lambda = 632 \text{ nm}$ ) projeté sur un détecteur à couplage de charge. Notons que les paramètres géométriques du réseau ont été ajustés de telle manière à pouvoir collecter tous les ordres « fondamentaux » ( $a_2 = 5 \mu\text{m}$ ). Les rayons des cercles tracés sont proportionnels à l'inverse des distances de base composant le pavage Penrose ( $a_5 > a_4 > a_3 > a_2 > a_1$ ). Notons que le coefficient de Fourier de la composante associé à la longueur  $a_3$  possède une amplitude beaucoup plus petite que les autres composantes, les interférences constructives ne conduisant pas nécessairement à des pics de Bragg visibles.

mentaires composant ce motif), tel que :

$$\alpha_{i=1,\dots,5}^n = \pm \alpha_i \cos\left(\frac{n2\pi}{5}\right) \hat{x} \pm \alpha_i \sin\left(\frac{n2\pi}{5}\right) \hat{y} \quad \text{avec } n = 0, \dots, 4 \quad (5.1)$$

et,

$$\alpha_i = \frac{2\pi}{(a_i \sin(2\pi/5))}. \quad (5.2)$$

La transformée de Fourier du pavage Penrose peut être complètement décrite par

ces jeux de vecteurs réciproques, conformément à la relation de Bragg standard. Les pics de diffraction intenses de plus petite fréquence correspondent alors en valeurs absolues aux vecteurs  $\alpha_2^n$ .

Remarquons qu'une difficulté immédiate surgit du fait que les plus petits vecteurs réciproques pointent alors vers le centre peu intense de la transformée de Fourier. Nous pouvons toutefois toujours y trouver une succession de pics intenses dont les fréquences s'échelonnent suivant les normes  $\alpha_i$  (cercles concentriques sur la figure 5.9).

Les résonances de transmission peuvent maintenant être assignées en insérant simplement la relation 5.2 dans la relation de type Bragg définissant la condition de couplage de la lumière incidente avec les PS (relation 1.10). Nous trouvons alors que les deux résonances principales visibles sur le spectre de la figure 5.8, centrées à 470 nm et 530 nm, sont reliées respectivement aux vecteurs de norme  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$ . Dans ce cas, les pics correspondent à des modes PS excités sur l'interface métal-air ; le doublet à plus grande longueur d'onde est associé aux mêmes résonances, mais excités sur l'interface métal-verre.

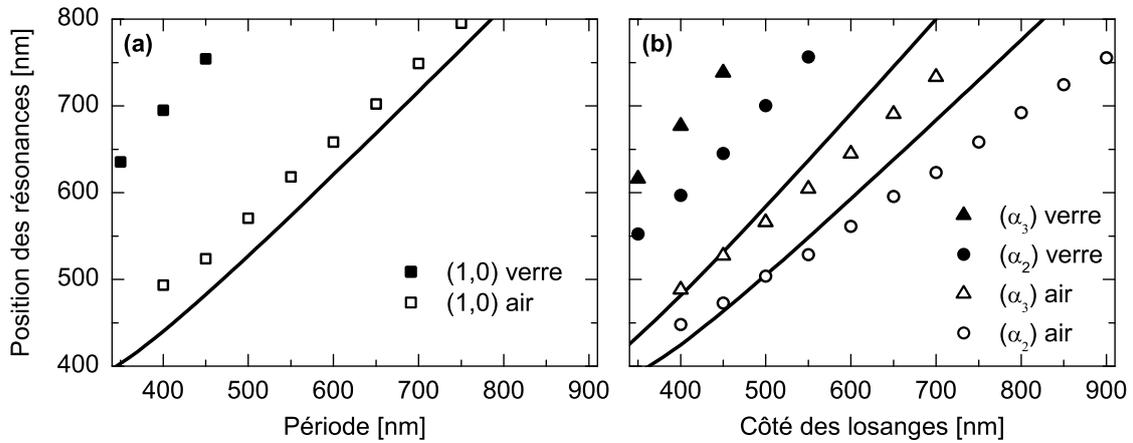
### 5.3.4 Conséquences de la perte d'une périodicité stricte

Afin de révéler les mécanismes qui sont spécifiques à cet arrangement quasipériodique des ouvertures, nous avons effectué une étude comparative entre les réseaux périodiques et les pavages Penrose, en nous appuyant sur les résultats des deux chapitres précédents.

#### Dispersion des résonances

Dans un premier temps, nous avons suivi l'évolution des résonances lorsque nous varions le paramètre de la structure :  $a_2$  le côté des losanges pour le pavage Penrose, et  $p$  la période pour le réseau périodique. Ces dimensions ont été variées de 350 à 900 nm en gardant un diamètre d'ouverture constant, fixé à 150 nm. Les deux séries de structures ont été gravées dans le même film d'Ag de 300 nm d'épaisseur déposé sur verre.

De la même manière que pour l'étude sur l'influence du métal (voir section 3.3), nous avons étudié la dispersion des maxima de transmission situés aux plus grandes



**Fig. 5.10** – Évolution de la position des résonances en fonction (a) de la période pour un réseau périodique et (b) de la longueur du côté des losanges pour un pavage Penrose. Dans les deux cas le diamètre des ouvertures est fixé à 150 nm. Les positions des résonances estimées à partir de la relation de couplage aux PS pour l'interface métal-air (voir texte) sont présentées sous la forme de lignes continues.

longueurs d'onde. Toutefois, compte tenu des petites dimensions composant le motif Penrose ( $a_1 \sim 0.618 a_2$ ) et du profil légèrement émoussé des ouvertures gravées par FIB, la qualité des structures s'altère lorsque  $a_2 < 350$  nm. Afin de tout de même suivre la dispersion des résonances sur une large gamme spectrale, nous avons préféré suivre les modes de l'interface métal-air (situés à des longueurs d'onde plus courtes). Précisons qu'en ce qui concerne le motif Penrose, nous avons suivi les résonances  $(\alpha_2)$  et  $(\alpha_3)$ , proches en énergie de la résonance  $(1,0)$  d'un réseau périodique.

Les données relatives aux réseaux périodiques, présentées dans la figure 5.10(a), permettent de retrouver l'évolution que nous avons observé dans le chapitre 3 : la résonance suit de près la condition de couplage aux PS sur une structure périodique (ligne continue), avec un décalage constant vers le rouge provenant de l'interférence entre la transmission directe à travers les trous et la transmission associée aux résonances PS (effet Fano).

En ce qui concerne les pavages Penrose nous comparons sur la figure 5.10(b) les positions expérimentales des résonances à celles obtenues en insérant les vecteurs réciproques « effectifs » définis précédemment (relation 5.1) dans la condition de couplage aux PS sur une structure périodique (relation 1.10). Ces positions ont été

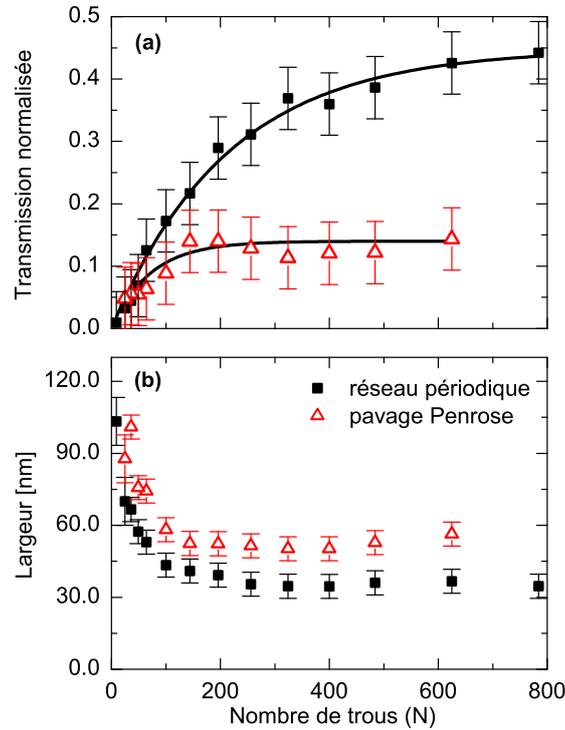
calculées pour les résonances  $(\alpha_2)$  et  $(\alpha_3)$  et apparaissent sous la forme de lignes continues sur la figure 5.10(b). Si dans l'ensemble ces données calculées s'accordent relativement bien aux données expérimentales, nous remarquons tout de même un écart qui augmente en direction des grandes longueurs d'onde devenant alors significatif. Cet écart indique probablement que la dynamique des PS sur un réseau Penrose est différente de celle sur un réseau périodique. La relation de couplage aux PS, en tant que loi de type Bragg, permet de décrire efficacement le couplage aux PS pour les réseaux périodiques car ces derniers peuvent être vus comme une succession de lignes de trous régulièrement espacées (plan de phase). Cette propriété est totalement perdue dans le cas du pavage Penrose. Dans ce cas, nous devons considérer la diffusion des modes de surface au niveau de chaque trou pris individuellement, ce qui implique de devoir tenir compte de termes d'ordres supérieurs pour décrire précisément la dynamique de diffusion des PS.

### Penrose et effets de taille finie

Cette différence dans la dynamique de diffusion des PS peut être explorée plus en détail en reproduisant par exemple l'expérience sur les effets de tailles finies décrite dans le chapitre 4 (section 4.3). Nous avons comparé l'évolution du mode  $\alpha_3$  d'un pavage Penrose à celle du mode  $(1, 0)$  d'un réseau périodique lorsque le nombre de trous  $N$  composant ces deux types de structure augmente. Notons que dans les conditions expérimentales choisies, les résonances  $(\alpha_3)$  et  $(1, 0)$  se situent aux mêmes longueurs d'onde. Aussi pour cette étude nous avons choisi  $a_2 = p = 450$  nm.

Nous avons fabriqué les réseaux périodiques et les pavages Penrose de tailles croissantes dans le même film d'argent. Puis, nous avons recouvert les structures avec un liquide d'indice ajusté à celui du verre afin de travailler dans une configuration symétrique, connue pour optimiser les efficacité de transmission [58]. Enfin, de la même manière que dans la section 4.3, nous avons extrait l'intensité et la largeur à mi-hauteur des pics de transmission étudiés. Ces données sont présentées dans la figure 5.11.

Dans les deux cas, nous retrouvons que l'intensité de transmission augmente vers saturation lorsque le nombre de trous augmente. Mais à nouveau nous pouvons clairement distinguer le réseau périodique et le pavage Penrose. Nous remarquons



**Fig. 5.11** – (a) Intensités de transmission et (b) largeurs à mi-hauteur des résonances  $(1,0)$  et  $(\alpha_3)$  en fonction du nombre de trous composant respectivement un réseau périodique et un réseau Penrose. Les intensités sont normalisées à l’aire occupée par les trous. Les structures ont été recouvertes d’un liquide d’indice ( $n = 1.5$ ) et leurs paramètres géométriques ( $a_2 = p = 450$  nm) ont été choisis de telle manière à ce que les résonances suivies apparaissent aux mêmes longueurs d’onde.

en effet que la saturation intervient beaucoup plus tôt dans le cas des réseaux quasipériodiques. Un ajustement de la relation 4.3 aux données expérimentales permet d’obtenir un nombre de trous caractérisant la saturation  $N_c = 70$  et 215 ouvertures, respectivement pour le pavage Penrose et le réseau périodique, indiquant que la saturation intervient environ trois fois plus rapidement pour le réseau quasipériodique. D’autre part, nous pouvons également remarquer qu’à saturation, dans les conditions expérimentales propres à cette expérience, un réseau périodique est environ trois fois plus efficace qu’un réseau Penrose.

De la même manière que précédemment (section 4.3.4) nous pouvons corréler ces différences de vitesse de saturation aux valeurs asymptotiques de la largeur des

résonances. Nous remarquons en effet que la largeur minimale des pics, obtenue dans la limite des structures étendues, est plus grande dans le cas des réseaux quasipériodiques que dans le cas des réseaux périodiques. Cette observation indique une augmentation des pertes totales dans le système aperiodique par rapport au système parfaitement périodique et donc une longueur de propagation plus courtes des PS sur un réseau quasipériodique que sur un réseau périodique. Une évaluation de ces valeurs à partir de la relation 4.4 donne  $2.3 \mu\text{m}$  et  $3.5 \mu\text{m}$  pour respectivement le pavage Penrose et le réseau périodique.

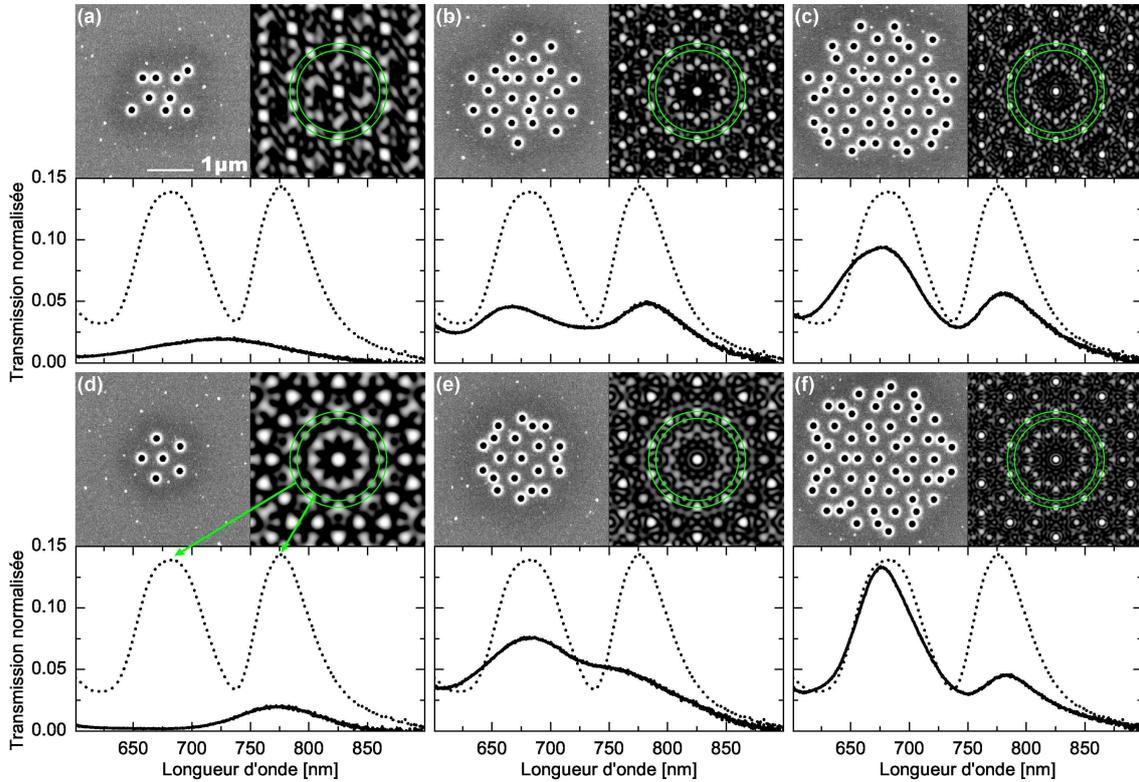
Rappelons ici que dans les deux cas, les diamètres des ouvertures sont identiques et que les structures ont été gravées dans le même film, avec une précision similaire. De ce fait la réduction de la longueur de propagation des PS sur le réseau Penrose peut uniquement être attribuée à une augmentation de la diffusion des PS à la surface du réseau induite par la quasipériodicité elle-même. Cette observation est compatible avec un processus de diffusion multiple que nous introduisons précédemment, et qui induit une propagation complexe des modes PS à la surface du réseau quasipériodique.

### 5.3.5 Arrangement local

La propagation des PS sur un pavage Penrose se trouvant réduite en comparaison de celle sur un réseau périodique, nous nous attendons à ce que le spectre de transmission soit particulièrement sensible à l'arrangement local des ouvertures.

Afin d'éclairer cette hypothèse nous avons reconsidéré l'expérience précédente en nous focalisant sur les petits nombres de trous et en choisissant deux origines distinctes comme point de départ à la construction du pavage Penrose. Précisons que ces deux origines ont été choisies dans le même pavage de Penrose, de telle sorte que l'une de ces sous-structures soit asymétrique et l'autre symétrique.

Les images SEM, les transformées de Fourier numériques (TF) ainsi que les spectres de transmission de ces sous-structures sont présentés dans la figure 5.12. Nous remarquons que l'origine symétrique, de forme pentagonale (figure 5.12(d)), est caractérisée par une TF plutôt bien définie, dans laquelle le pic associé à  $(\alpha_3)$  domine, caractéristique que l'on retrouve sur le spectre de transmission. Au contraire la TF de sous-structure asymétrique qui possède d'ailleurs davantage de trous, n'est



**Fig. 5.12** – Sous-structures extraites du même pavage de Penrose ( $a_2 = 450$  nm et  $d = 150$  nm). Les cadrans (a), (b) et (c) présentent la construction d'un réseau Penrose à partir d'une origine asymétrique, alors que les cadrans (d), (e) et (f) présente la construction du même motif mais à partir d'une origine symétrique. Chaque cadrans contient la transformée de Fourier numérique de la sous-structure correspondante, sur laquelle les positions des modes  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  sont indiquées par des cercles de Bragg. Les spectres de transmission des structures sont également représentés (ligne continue). Le spectre de transmission d'un réseau étendu ( $N = 636$  ouvertures) apparaît en tant que référence sur chaque spectre (ligne en pointillés).

pas très bien définie, ce qui se retrouve également sur le spectre de transmission qui est « très large », peu résonant. Il est important de considérer ces effets locaux car ils peuvent donner l'impression biaisée que l'apparition tardive ( $N \geq 25$ ) du mode ( $\alpha_3$ ) dans la figure 5.11 est liée à un effet d'ordre à longue portée. Si nous avons choisi de commencer avec l'origine symétrique présentée dans la figure 5.12(d), un pic ( $\alpha_3$ ) bien défini aurait été déjà présent pour les petits  $N$ .

Lorsque  $N$  augmente, le fort ordre d'orientation des quasicristaux annule rapidement ces différences, rendant la transformée de Fourier indépendante de l'origine

choisie. Ce point est illustré dans les figures 5.12(b), (c), (e) et (f) dans lesquelles nous pouvons remarquer que la transformée de Fourier tend rapidement vers celle d'une structure étendue. Lorsque les réseaux sont composés d'environ 50 ouvertures, les modes ( $\alpha_2$ ) et ( $\alpha_3$ ) sont déjà optiquement bien définis. L'ajout de trous supplémentaires aura pour conséquence d'affiner ces résonances, signature de l'ordre à longue portée. Expérimentalement, l'amplitude et la largeur de ces modes saturent du fait du temps de vie limité des PS. Sur un pavage Penrose, les PS ne peuvent sonder qu'un nombre limité de trous. Cette limite intrinsèque aux PS réduit artificiellement la portée de l'ordre à longue distance.

Notre étude détaillée [136] confirme l'émergence du phénomène de transmission exaltée dans les arrangements quasipériodiques, tout d'abord observé dans le visible pour un motif de symétrie 8 composé de carrés et de parallélogrammes [131]. Par la suite, ce phénomène fut également mesuré dans le domaine des infra-rouges lointains [137] et des micro-ondes [138].

La transmission exaltée a été observé à travers des quasicristaux possédant différentes symétrie rotationnelles [131, 136, 137, 139, 140] et également des pavages d'Archimède [141]. Au cours d'une de ces études [137], des auteurs ont d'ailleurs souligné qu'il est possible de façonner directement l'espace réciproque de manière à obtenir une symétrie rotationnelle d'ordre quelconque. La structure dans l'espace direct étant alors simplement obtenue par une transformé de Fourier inverse. De cette manière les auteurs gênèrent un réseau quasipériodique de symétrie 18, qui fait apparaître des pics de transmission exaltée dans les infra-rouges lointains.

Des calculs théoriques savent désormais reproduire parfaitement nos observations expérimentales [142]. Ces simulations montrent également que le profil d'émission des motifs Penrose est radicalement différent de celui observé pour des réseaux périodiques [110]. La lumière n'est pas réémise de manière uniforme par le réseau, certains arrangement locaux pouvant avoir des coefficients de transmission très élevés. Expérimentalement, la limite optique de résolution nous empêche malheureusement de pouvoir distinguer ces « points chauds ».

Le spectre de diffraction de telles structures à également été étudié. En champ lointain il s'est révélé être très sensible à la polarisation [143] et en champ moyen une étude a révélé qu'un effet de reconstruction de type Talbot peut conduire à l'apparition de « points chauds » sub-longueurs d'onde hors de la structure [144].

## 5.4 Conclusion

La réponse spectrale des arrangements aléatoires de trous est comparable à celle d'ouvertures isolées dans la limite des faibles valeurs de la densité moyenne d'ouverture. Des modulations supplémentaires apparaissent dès lors que la densité moyenne augmente, reflétant des interactions entre les ouvertures composant la structure.

Lorsque les réseaux aléatoires atteignent le stade d'arrangements compacts, les modulations apparaissent comme des signatures optiques clairement définies qui peuvent être associées à l'ordre à courte portée, caractérisant alors le système. Ces résonances restent toutefois beaucoup moins bien définies que dans le cas de réseaux périodiques montrant l'importance de l'ordre à longue portée dans le phénomène de transmission exaltée.

Dans ce contexte, nous avons vérifié que les réseaux quasipériodiques, caractérisés uniquement par un ordre à longue portée, possèdent des pics de transmission exaltée. La dynamique de diffusion des modes PS associés à ces résonances est néanmoins différente de celle connue sur les réseaux périodiques, la perte de la périodicité stricte augmentant le caractère localisé des résonances PS. Cette observation inattendue mérite une attention particulière car elle témoigne à la fois de la propagation complexe des PS sur les films structurés et des propriétés subtiles des quasicristaux.

# Conclusion et perspectives

Les travaux rapportés dans cette thèse ont couvert divers aspects de la transmission de la lumière à travers des réseaux d'ouvertures sub-longueurs d'onde. Une étude systématique du spectre de transmission de réseaux gravés dans différents métaux nous a permis d'isoler l'influence des propriétés optiques du métal dans le phénomène de transmission exaltée. Cette dépendance traduit bien le rôle clé des plasmons de surface dans le processus de transmission. Ainsi les métaux nobles caractérisés par une forte densité d'électrons libres et une faible absorption permettent d'obtenir les coefficients de transmission les plus élevés. La forte absorption des métaux de transition ainsi que leur faible densité d'électrons libres se révèlent être un facteur limitant, tout comme l'impossibilité d'exciter des plasmons de surface sur un métal.

En variant les paramètres géométriques du réseau (c'est-à-dire en variant le facteur de structure) nous avons pu déplacer les résonances plasmons de surface, et ainsi sonder l'effet des constantes diélectriques du métal sur une large gamme spectrale. Si la position des résonances évaluée à partir des constantes diélectriques du métal concorde avec les données expérimentales, il n'en va pas de même pour la largeur des résonances. Ces dernières sont fortement influencées par les pertes radiatives dues à la diffusion des plasmons de surface par les ouvertures composant le réseau.

D'un point de vue général, les pertes totales (pertes radiatives et non radiatives) définissent la longueur de propagation maximale des plasmons de surface sur le réseau. En diminuant simplement la taille des ouvertures, il est possible de diminuer les pertes radiatives et ainsi allonger cette longueur. Nous avons relié cette augmentation du temps de vie des plasmons de surface à une augmentation de l'efficacité de la transmission exaltée. Une mesure précise du spectre de transmission d'ouvertures uniques comparé au spectre de structures étendues nous a permis

de vérifier cette connexion. Cette dernière est également confortée par des calculs réalisés dans les équipes des Pr. L. Martín-Moreno (Zaragoza) et Pr. F.J. García-Vidal (Madrid).

Le profil d'émission du réseau reflète parfaitement la nature délocalisée de l'onde de surface impliquée dans le processus de transmission. Ce dernier est notamment marqué par de forts effets de bord dans la direction de propagation des plasmons de surface sur le réseau.

Le facteur de structure bien défini des réseaux périodiques rend l'excitation des plasmons de surface sur ces structures particulièrement efficace. Ce dernier devient de mieux en mieux défini avec le nombre de trous composant le réseau. Ceci explique en partie l'effet de taille finie dans la réponse optique des réseaux. À l'opposé, indépendamment de leur taille, les arrangements aléatoires possédant une faible densité de trous ne présentent pas de structures Fourier particulières, et leur réponse optique coïncide à la somme des contributions indépendantes de chaque trou. Lorsque la densité augmente jusqu'à atteindre une valeur limite correspondant à une structure aléatoire compacte, les interactions entre les trous prennent une dimension collective liée à l'établissement progressive d'un ordre à courte portée dans le système. Ces signatures restent toutefois moins bien définies que dans le cas d'un réseau périodique soulignant l'importance de l'ordre à longue portée. Cette conclusion est appuyée par l'apparition de pic de transmission exaltée dans des quasicristaux. Néanmoins nos mesures montrent que l'absence d'une périodicité stricte induit un certain nombre de différences qui reflètent à la fois la propagation complexe des plasmons de surface sur les films structurés et les propriétés subtiles des quasicristaux.

Ces études nous ont permis d'approfondir la compréhension de la transmission exaltée à travers des réseaux de trous sub-longueurs d'onde. Ceci est particulièrement important compte tenu du nombre grandissant d'application de ces structures. En effet, à l'heure actuelle la transmission exaltée est utilisée ou étudiée dans des domaines divers tels que les sondes biologiques, les techniques de spectroscopie (fluorescence, spectre vibrationnel ou Raman de molécules), les systèmes microfluidiques, les systèmes optiques (filtrage, polarisation et multiplexage de la lumière), les composants optoélectroniques (diode électroluminescente inorganique et organique, diode laser à semi-conducteur et les photodétecteurs)... L'atout ma-

jeu des réseaux de trous sub-longueurs d'onde est de combiner un comportement résonant avec un fort contraste optique.

L'intégration de ces structures pose immédiatement la question du choix du métal et le problème de l'influence de la taille des réseaux puisque le composant aura une taille finie, souvent très petite, et le métal doit être compatible avec le procédé de fabrication et les autres matériaux utilisés. Notre travail a tenté de dégager les principaux effets qu'une telle problématique induit sur les propriétés optiques des réseaux de trous sub-longueurs d'onde.

Dans un deuxième temps, nous avons insisté sur les relations établies entre géométrie de la structure et dynamique des plasmons de surface excités sur la structure. Dans un contexte exploratoire, il est tout à fait possible de varier ces géométries allant de la périodicité à la quasipériodicité en passant par l'aléatoire pour adresser des modes d'utilisation spécifiques. Au caractère résonant des réseaux périodiques, on peut préférer les signatures optiques associées aux ouvertures uniques des réseaux aléatoires comme c'est le cas par exemple dans les méthodes de spectroscopie par corrélations de fluorescence. Tout récemment, les structures quasipériodiques semblent définir des axes d'applications intéressants dans le domaine de mesures de faibles variations d'indice et le domaine de l'imagerie optique à haute résolution.

Le cadre défini par ces structures et le caractère sub-longueur d'onde de leurs ouvertures ne se limitent pas au domaine de l'optique. Il a récemment été démontré en acoustique qu'un effet de transmission exaltée pouvait avoir lieu. Il apparaît intéressant de confronter les mêmes études sur les matériaux impliqués, les effets de taille et les géométries dans le domaine acoustique aux résultats obtenus dans cette thèse dans le domaine optique.



# Références bibliographiques

- [1] E. Hecht. *Optics*. Pearson Education, San Francisco, 2002.
- [2] H.C. van de Hulst. *Light scattering by small particles*. Dover, New York, 1981.
- [3] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 2006.
- [4] J.D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. John Wiley & Sons, Hoboken, 1999.
- [5] H. Bethe. Theory of diffraction by small holes. *Phys. Rev.*, 66 :163, 1944.
- [6] W.R. Smythe. The double current sheet in diffraction. *Phys. Rev.*, 72 :1066, 1947.
- [7] C.J. Bouwkamp. On Bethe's theory of diffraction by small holes. *Philips. Res. Rep.*, 5 :321, 1950.
- [8] C.J. Bouwkamp. On the diffraction of electromagnetic waves by small circular disks and holes. *Philips. Res. Rep.*, 5 :401, 1950.
- [9] E. Betzig and J.K. Trautman. Near-field optics : microscopy, spectroscopy, and surface modification beyond the diffraction limit. *Science*, 257 :189, 1992.
- [10] E. Wolf. *Progress in Optic*, volume 50. Elsevier, Amsterdam, 2007.
- [11] A. Roberts. Electromagnetic theory of diffraction by circular aperture in a thick, perfectly conducting screen. *J. Opt. Soc. Am. A*, 4 :1970, 1987.
- [12] A. Roberts. Near-zone fields behind circular apertures in thick, perfectly conducting screens. *J. Appl. Phys.*, 65 :2896, 1989.
- [13] Y. Leviatan. Study of near-zone fields of a small aperture. *J. Appl. Phys.*, 60 :1577, 1986.

- [14] A. Drezet, J.C. Woehl, and S. Huant. Extension of Bethe's diffraction model to conical geometry : application to near-field optics. *Europhys. Lett.*, 54 :736, 2001.
- [15] A. Drezet, J.C. Woehl, and S. Huant. Diffraction by a small aperture in conical geometry : application to metal-coated tips used in near-field scanning optical microscopy. *Phys. Rev. E*, 65 :046611, 2002.
- [16] L. Novotny and B. Hecht. *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 2006.
- [17] C. Obermüller and K. Karrai. Far field characterisation of diffracting circular apertures. *Appl. Phys. Lett.*, 67 :3408, 1995.
- [18] C. Obermüller, K. Karrai, G. Kolb, and G. Abstreiter. Transmitted radiation through a subwavelength-sized tapered optical fiber tip. *Ultramicroscopy*, 61 :171, 1995.
- [19] R. Wannemacher. Plasmon-supported transmission of light through nanometric holes in metallic thin films. *Opt. Commun.*, 195 :107, 2001.
- [20] E. Popov, N. Bonod, M. Nevière, H. Rigneault, P.F. Lenne, and P. Chaumet. Surface plasmon excitation on a single subwavelength hole in a metallic sheet. *Appl. Opt.*, 44 :2332, 2005.
- [21] T. Rindzevicius, Y. Alaverdyan, B. Sepulveda, T. Pakizeh, M. Käll, R. Hillenbrand, J. Aizpurua, and F.J. García de Abajo. Nanohole plasmons in optically thin gold films. *J. Phys. Chem. C*, 111 :1207, 2007.
- [22] E. Popov, M. Nevière, P. Boyer, and N. Bonod. Light transmission through a subwavelength hole. *Opt. Commun.*, 255 :338, 2005.
- [23] E. Popov, M. Nevière, A. Sentenac, N. Bonod, A.L. Fehrembach, J. Wenger, P.F. Lenne, and H. Rigneault. Single-scattering theory of light diffraction by a circular subwavelength aperture in a finitely conducting screen. *J. Opt. Soc. Am. A*, 24 :339, 2007.
- [24] F.J. García de Abajo. Light transmission through a single cylindrical hole in a metallic film. *Opt. Express*, 10 :1475, 2002.
- [25] F.J. García-Vidal, E. Moreno, J.A. Porto, and L. Martín-Moreno. Transmission of light through a single rectangular hole. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :103901, 2005.

- [26] F.J. García-Vidal, L. Martín-Moreno, E. Moreno, L.K.S. Kumar, and R. Gordon. Transmission of light through a single rectangular hole in a real metal. *Phys. Rev. B*, 74 :153411, 2006.
- [27] K.J. Klein Koerkamp, S. Enoch, F.B. Segerink, N.F. van Hulst, and L. Kuipers. Strong influence of hole shape on extraordinary transmission through periodic arrays of subwavelength holes. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :183901, 2004.
- [28] A. Degiron, H.J. Lezec, N. Yamamoto, and T.W. Ebbesen. Optical transmission properties of a single subwavelength aperture in a real metal. *Opt. Commun.*, 239 :61, 2004.
- [29] J. Prikulis, P. Hanarp, L. Olofsson, D. Sutherland, and M. Käll. Optical spectroscopy of nanometric holes in thin gold films. *Nano Lett.*, 4 :1003, 2004.
- [30] K.L. van der Molen, K.J. Klein Koerkamp, S. Enoch, F.B. Segerink, N.F. van Hulst, and L. Kuipers. Role of shape and localized resonances in extraordinary transmission through periodic arrays of subwavelength holes : experiment and theory. *Phys. Rev. B*, 72 :045421, 2005.
- [31] H. Raether. *Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings*. Springer-Verlag, Berlin, 1988.
- [32] J. Zenneck. Über die Fortpflanzung ebener elektromagnetischer Wellen Mngs einer ebenen Leiterfläche und ihre Beziehung zur drahtlosen Telegraphie. *Ann. Phys.*, 23 :846, 1907.
- [33] R.H. Ritchie. Plasma losses by fast electrons in thin films. *Phys. Rev.*, 106 :874, 1957.
- [34] C.J. Powell and J.B. Swan. Effect of oxidation on the characteristic loss spectra of aluminum and magnesium. *Phys. Rev.*, 118 :640, 1960.
- [35] E.D. Palik. *Handbook of optical constants of solids*. Academic, London, 1985.
- [36] V.M. Agranovich and D.L. Mills. *Surface polaritons : electromagnetic waves at surfaces and interfaces*. North-Holland, Amsterdam, 1982.
- [37] S.A. Maier. *Plasmonics : Fundamentals and Applications*. Springer, New York, 2007.
- [38] J. Homola, S.S. Yeea, and G. Gauglitz. Surface plasmon resonance sensors : review. *Sensor. actuat. B-Chem.*, 54 :3, 1999.

- [39] J. Homola. Surface plasmon resonance sensors for detection of chemical and biological species. *Chem. Rev.*, 108 :462, 2008.
- [40] D.L. Jeanmaire and R.P. Van Duyne. Surface raman spectroelectrochemistry : Part I. Heterocyclic, aromatic, and aliphatic amines adsorbed on the anodized silver electrode. *J. Electroanal. Chem.*, 84 :1, 1977.
- [41] A.G. Brolo, E. Arctander, R. Gordon, B. Leathem, and K.L. Kavanagh. Nanohole-enhanced raman scattering. *Nano Lett.*, 4 :2015, 2004.
- [42] S.M. Williams, K.R. Rodriguez, S. Teeters-Kennedy, S. Shah, T.M. Rogers, A.D. Stafford, and J.V. Coe. Scaffolding for nanotechnology : extraordinary infrared transmission of metal microarrays for stacked sensors and surface spectroscopy. *Nanotechnol.*, 15 :S495, 2004.
- [43] J. Dintinger, S. Klein, and T.W. Ebbesen. Molecule-surface plasmon interactions in hole arrays : enhanced absorption, refractive index changes, and all-optical switching. *Adv. Mater.*, 18 :1267, 2006.
- [44] D.S. Kim, S.C. Hohng, V. Malyarchuk, Y.C. Yoon, Y.H. Ahn, K.J. Yee, J.W. Park, J. Kim, Q.H. Park, and C. Lienau. Microscopic origin of surface-plasmon radiation in plasmonic band-gap nanostructures. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :143901, 2003.
- [45] T.W. Ebbesen, C. Genet, and S.I. Bozhevolnyi. Surface plasmon circuitry. *Phys. Today*, page 44, May 2008.
- [46] A. Degiron and T.W. Ebbesen. The role of localized surface plasmon modes in the enhanced transmission of periodic subwavelength apertures. *J. Opt. A : Pure Appl. Op.*, 7 :S90, 2005.
- [47] T.W. Ebbesen, H.J. Lezec, H.F. Ghaemi, T. Thio, and P.A. Wolff. Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays. *Nature*, 391 :667, 1998.
- [48] H.F. Ghaemi, Tineke Thio, D.E. Grupp, T.W. Ebbesen, and H.J. Lezec. Surface plasmons enhance optical transmission through subwavelength holes. *Phys. Rev. B*, 58 :6779, 1998.
- [49] C. Genet and T.W. Ebbesen. Light in tiny holes. *Nature*, 445 :39, 2007.
- [50] F.J. García de Abajo. *Colloquium* : Light scattering by particle and hole arrays. *Rev. Mod. Phys.*, 79 :1267, 2007.

- 
- [51] J.V. Coe, J.M. Heer, S. Teeters-Kennedy, H. Tian, and K.R. Rodriguez. Extraordinary transmission of metal films with arrays of subwavelength holes. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 59 :179, 2008.
- [52] R. Gordon, D. Sinton, K.L. Kavanagh, and A.G. Brolo. A new generation of sensors based on extraordinary optical transmission. *Acc. Chem. Rev.*, 41, 2008.
- [53] F.J. García-Vidal, L. Martín-Moreno, T.W. Ebbesen, and L. Kuipers. Light passing through subwavelength apertures. *Rev. Mod. Phys.*, 2008.
- [54] W.L. Barnes, T.W. Preist, S.C. Kitson, and J.R. Sambles. Physical origin of photonic energy gaps in the propagation of surface plasmons on gratings. *Phys. Rev. B*, 54 :6227, 1996.
- [55] W.L. Barnes, A. Dereux, and T.W. Ebbesen. Surface plasmon subwavelength optics. *Nature*, 424 :824, 2003.
- [56] E. Altewischer, M.P. van Exter, and J.P. Woerdman. Polarization analysis of propagating surface plasmons in a subwavelength hole array. *J. Opt. Soc. Am. B*, 20 :1927, 2003.
- [57] E. Altewischer, X. Ma, M.P. van Exter, and J.P. Woerdman. Resonant bragg scatter of surface plasmons on nanohole arrays. *New J. Phys.*, 8 :57, 2006.
- [58] A. Krishnan, T. Thio, T.J. Kim, H.J. Lezec, T.W. Ebbesen, P.A. Wolff, J. Pendry, L. Martín-Moreno, and F.J. García-Vidal. Evanescently coupled resonance in surface plasmon enhanced transmission. *Opt. Commun.*, 200 :1, 2001.
- [59] L. Martín-Moreno, F.J. García-Vidal, H.J. Lezec, K.M. Pellerin, T. Thio, J.B. Pendry, and T.W. Ebbesen. Theory of extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :1114, 2001.
- [60] A. Degiron, H.J. Lezec, W.L. Barnes, and T.W. Ebbesen. Effects of hole depth on enhanced light transmission through subwavelength hole arrays. *Appl. Phys. Lett.*, 81 :4327, 2002.
- [61] U. Fano. Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts. *Phys. Rev.*, 124, 1866.
- [62] M. Sarrazin, J.P. Vigneron, and J.M. Vigoureux. Role of Wood anomalies in optical properties of thin metallic films with a bidimensional array of subwavelength holes. *Phys. Rev. B*, 67 :085415, 2003.

- [63] C. Genet, M.P. van Exter, and J.P. Woerdman. Fano-type interpretation of red shifts and red tails in hole array transmission spectra. *Opt. Commun.*, 225 :331, 2003.
- [64] H.J. Lezec, A. Degiron, E. Devaux, R.A. Linke, L. Martin-Moreno, F.J. Garcia-Vidal, and T.W. Ebbesen. Beaming light from a subwavelength aperture. *Science*, 297 :820, 2002.
- [65] F. I. Baida and D. Van Labeke. Light transmission by subwavelength annular aperture arrays in metallic films. *Opt. Commun.*, 209 :17, 2002.
- [66] W. Fan, S. Zhang, B. Minhas, K.J. Malloy, and S.R.J. Brueck. Enhanced infrared transmission through subwavelength coaxial metallic arrays. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :033902, 2005.
- [67] J. Salvi, M. Roussey, F.I. Baida, M.P. Bernal, A. Mussot, T. Sylvestre, H. Maillotte, D. Van Labeke, A. Perentes, I. Utke, C. Sandu, P. Hoffmann, and B. Dwir. Annular aperture arrays : study in the visible region of the electromagnetic spectrum. *Opt. Lett.*, 13 :1611, 2005.
- [68] X. Shi, L. Hesselink, and R.L. Thornton. Ultrahigh light transmission through a C-shaped nanoaperture. *Opt. Lett.*, 28 :1320, 2003.
- [69] J.A. Matteo, D.P. Fromm, Y. Yuen, P.J. Schuck, W.E. Moerner, and L. Hesselink. Spectral analysis of strongly enhanced visible light transmission through single c-shaped nanoapertures. *Appl. Phys. Lett.*, 85 :648, 2004.
- [70] U. Schröter and D. Heitmann. Surface-plasmon-enhanced transmission through metallic gratings. *Phys. Rev. B*, 58 :15419, 1998.
- [71] J.A. Porto, F.J. García-Vidal, and J.B. Pendry. Transmission resonances on metallic gratings with very narrow slits. *Phys. Rev. Lett.*, 83 :2845, 1999.
- [72] Y. Pang, C. Genet, and T.W. Ebbesen. Optical transmission through subwavelength slit apertures in metallic films. *Opt. Commun.*, 280 :10, 2007.
- [73] R. Gordon, A.G. Brolo, A. McKinnon, A. Rajora, B. Leathem, and K.L. Kavanagh. Enhanced transmission of THz radiation through subwavelength holes. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :037401, 2004.
- [74] J. Elliott, I.I. Smolyaninov, N.I. Zheludev, and A.V. Zayats. Wavelength dependent birefringence of surface plasmon polaritonic crystals. *Phys. Rev. B*, 70 :233403, 2004.

- [75] M. Sarrazin and J.P. Vigneron. Polarization effects in metallic films perforated with a bidimensional array of subwavelength rectangular holes. *Opt. Commun.*, 240 :89, 2004.
- [76] T. Thio, H.F. Ghaemi, H.J. Lezec, P.A. Wolff, and T.W. Ebbesen. Surface-plasmon-enhanced transmission through hole arrays in Cr films. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16 :1743, 1999.
- [77] Q. Wang, J. Li, C. Huang, C. Zhang, and Y. Zhu. Enhanced optical transmission through metal films with rotation-symmetrical hole arrays. *Appl. Phys. Lett.*, 87 :091105, 2005.
- [78] K.L. van der Molen, F.B. Segerink, N.F. van Hulst, and L. Kuipers. Influence of hole size on the extraordinary transmission through subwavelength hole arrays. *Appl. Phys. Lett.*, 85 :4316, 2004.
- [79] F. Miyamaru and M. Hangyo. Finite size effect of transmission property for metal hole arrays in subterahertz region. *Appl. Phys. Lett.*, 84 :2742, 2004.
- [80] J. Henzie, M.H. Lee, and T.W. Odom. Multiscale patterning of plasmonic metamaterials. *Nat. Nanotechnol.*, 2 :549, 2007.
- [81] D.E. Grupp, H.J. Lezec, and T.W. Ebbesen. Crucial role of metal surface in enhanced transmission through subwavelength apertures. *Appl. Phys. Lett.*, 77 :1569, 2000.
- [82] D.E. Grupp, H.J. Lezec, T. Thio, and T.W. Ebbesen. Beyond the Bethe limit : tunable enhanced light transmission through a single sub-wavelength aperture. *Adv. Mat.*, 11 :860, 1999.
- [83] T. Thio, K.M. Pellerin, R.A. Linke, H.J. Lezec, and T.W. Ebbesen. Enhanced light transmission through a single subwavelength aperture. *Opt. Lett.*, 26 :1972, 2001.
- [84] M. Sarrazin and J.P. Vigneron. Optical properties of tungsten thin films perforated with a bidimensional array of subwavelength holes. *Phys. Rev. E*, 68 :016603, 2003.
- [85] H. Lezec and T. Thio. Diffracted evanescent wave model for enhanced and suppressed optical transmission through subwavelength hole arrays. *Opt. Express*, 12 :3629, 2004.

- [86] F. Przybilla, A. Degiron, J.Y. Laluet, C. Genet, and T.W. Ebbesen. Optical transmission in perforated noble and transition metal films. *J. Opt. A : Pure Appl. Op.*, 8 :458, 2006.
- [87] V. Halté, A. Benabbas, and J.-Y. Bigot. Optical response of periodically modulated nanostructures near the interband transition threshold of noble metals. *Opt. Express*, 14 :2909, 2006.
- [88] S.G. Rodrigo, F.J. García-Vidal, and L. Martín-Moreno. Influence of material properties on extraordinary optical transmission through hole arrays. *Phys. Rev. B*, 77 :075401, 2008.
- [89] V. Halté, A. Benabbas, and J.-Y. Bigot. Surface plasmon dynamics in arrays of subwavelength holes : the role of optical interband transitions. *Opt. Express*, 16 :11611, 2008.
- [90] L.D. Landau, E.M. Lifshitz, and L.P. Pitaevskii. *Electrodynamics of continuous media*. Elsevier, Oxford, 1981.
- [91] Y. Ekinici, H.H. Solak, and C. David. Extraordinary optical transmission in the ultraviolet region through aluminum hole arrays. *Opt. Lett.*, 32 :172, 2007.
- [92] G. Ctistis, P. Patoka, X. Wang, K. Kempa, and M. Giersig. Optical transmission through hexagonal arrays of subwavelength holes in thin metal films. *Nano Lett.*, 7 :2926, 2007.
- [93] S.M. Williams and J.V. Coe. Dispersion study of the infrared transmission resonances of freestanding Ni microarrays. *Plasmonics*, 1 :87, 2006.
- [94] Y.T. Chang, T.H. Chuang, M.W. Tsai, L.C. Chen, and S.C. Lee. Dispersion relation of Al/Si surface plasmon in hexagonally ordered aluminum hole arrays. *J. Appl. Phys.*, 101 :054305, 2007.
- [95] H. Cao and A. Nahata. Resonantly enhanced transmission of terahertz radiation through a periodic array of subwavelength apertures. *Opt. Express*, 12 :1004, 2004.
- [96] D. Qu and D. Grischkowsky. Observation of a new type of Thz resonance of surface plasmons propagating on metal-film hole arrays. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :196804, 2004.
- [97] F. Miyamaru, M. Tanaka, and M. Hangyo. Resonant electromagnetic wave transmission through strontium titanate hole arrays with complex surface waves. *Phys. Rev. B*, 74 :115117, 2006.

- [98] A.K. Azad, Y. Zhao, W. Zhang, and M. He. Effect of dielectric properties of metals on terahertz transmission in subwavelength hole arrays. *Opt. Lett.*, 31 :2637, 2006.
- [99] M. Beruete, M. Sorolla, I. Campillo, J.S. Dolado, L. Martín-Moreno, J. Bravo-Abad, and F.J. García-Vidal. Enhanced millimeter-wave transmission through subwavelength hole arrays. *Opt. Lett.*, 29 :2500, 2004.
- [100] K.A. Tetz, R. Rokitski, M. Nezhad, and Y. Fainman. Excitation and direct imaging of surface plasmon polariton modes in a two-dimensional grating. *Appl. Phys. Lett.*, 86 :111110, 2005.
- [101] R. Müller, V. Malyarchuk, and C. Lienau. Three-dimensional theory on light-induced near-field dynamics in a metal film with a periodic array of nanoholes. *Phys. Rev. B*, 68 :205415, 2003.
- [102] J. Gómez Rivas, C. Schotsch, P. Haring Bolivar, and H. Kurz. Enhanced transmission of THz radiation through subwavelength holes. *Phys. Rev. B*, 68 :201306, 2003.
- [103] J. Gómez Rivas, C. Janke, P. Haring Bolivar, and H. Kurz. Transmission of THz radiation through InSb gratings of subwavelength apertures. *Opt. Express*, 13 :847, 2005.
- [104] D. Wasserman, E.A. Shaner, and J.G. Cederberg. Midinfrared doping-tunable extraordinary transmission from sub-wavelength gratings. *Appl. Phys. Lett.*, 90 :191102, 2007.
- [105] T. Matsui, Z.V. Vardeny, A. Agrawal, A. Nahata, and R. Menon. Resonantly-enhanced transmission through a periodic array of subwavelength apertures in heavily-doped conducting polymer films. *Appl. Phys. Lett.*, 88 :071101, 2006.
- [106] E.U. Donev, J.Y. Suh, F. Villegas, R. Lopez, R.F. Haglund Jr., and L.C. Feldman. Optical properties of subwavelength hole arrays in vanadium dioxide thin films. *Phys. Rev. B*, 73 :201401, 2006.
- [107] J.Y. Suh, E.U. Donev, R. Lopez, L.C. Feldman, and R.F. Haglund Jr. Modulated optical transmission of subwavelength hole arrays in metal-VO<sub>2</sub> films. *Appl. Phys. Lett.*, 88 :133115, 2006.

- [108] F. Miyamaru, M. Tanaka, and M. Hangyo. Resonant electromagnetic wave transmission through strontium titanate hole arrays with complex surface waves. *Phys. Rev. B*, 74 :115117, 2006.
- [109] A. Sommerfeld. *Optics*. Academic Press, London, 1949.
- [110] J. Bravo-Abad, A. Degiron, F. Przybilla, C. Genet, F.J. García-Vidal, L. Martín-Moreno, and T.W. Ebbesen. How light emerges from an illuminated array of subwavelength holes. *Nat. Phys.*, 2 :120, 2006.
- [111] J. Bravo-Abad, F.J. García-Vidal, and L. Martín-Moreno. Resonant transmission of light through finite chains of subwavelength holes in a metallic film. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :227401, 2004.
- [112] A.L. Baudrion, F. de Leon-Perez, O. Mahboub, A. Hohenau, H. Ditlbacher, F.J. Garcia-Vidal, J. Dintinger, T.W. Ebbesen, L. Martin-Moreno, and J.R. Krenn. Coupling efficiency of light to surface plasmon polariton for single subwavelength holes in a gold film. *Opt. Express*, 16 :3420, 2008.
- [113] F. Przybilla, A. Degiron, C. Genet, T.W. Ebbesen, F. de León-Pérez, J. Bravo-Abad, F.J. García-Vidal, and L. Martín-Moreno. Efficiency and finite size effects in enhanced transmission through subwavelength apertures. *Opt. Express*, 16 :9571, 2008.
- [114] R. Penrose. The role of aesthetics in pure and applied mathematical research. *Bull. Inst. Math. Appl.*, 10 :266, 1974.
- [115] A. Dogariu, A. Nahata, R.A. Linke, L.J. Wang, and R. Trebino. Optical pulse propagation through metallic nano-apertures. *Appl. Phys. B*, 74 :S69, 2002.
- [116] M. Airola, Y. Liu, and S. Blair. Second-harmonic generation from an array of sub-wavelength metal apertures. *J. Opt. A : Pure Appl. Op.*, 7 :S118, 2005.
- [117] J.W. Lee, M.A. Seo, D.H. Kang, K.S. Khim, S.C. Jeoung, and D.S. Kim. Terahertz electromagnetic wave transmission through random arrays of single rectangular holes and slits in thin metallic sheets. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :137401, 2007.
- [118] M.C. Hughes and R. Gordon. Optical transmission properties and enhanced loss for randomly positioned apertures in a metal film. *Appl. Phys. B*, 87 :239, 2007.
- [119] Von A. Feltz. *Amorphous inorganic materials and glasses*. VCH, New York, 1993.

- [120] C. Janot. *Quasicrystals : A Primer*. Oxford University Press, New York, 1994.
- [121] C. Sönnichsen, A.C. Duch, G. Steininger, M. Koch, G. von Plessen, and J. Feldmann. Launching surface plasmons into nanoholes in metal films. *Appl. Phys. Lett.*, 76 :140, 2000.
- [122] H.F. Schouten, N. Kuzmin, G. Dubios, T.D. Visser, G. Gbur, P.F.A. Alkemade, H. Blok, G.W.'t Hooft, D. Lenstra, and E.R. Eliel. Plasmon-assisted two-slit transmission : Young's experiment revisited. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :053901, 2005.
- [123] P. Lalanne, J.P. Hugonin, and J.C. Rodier. Theory of surface plasmon generation at nanoslit apertures. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :263902, 2005.
- [124] D. Levine and P.J. Steinhardt. Quasicrystals : a new class of ordered structures. *Phys. Rev. Lett.*, 53 :2477, 1984.
- [125] D. Shechtman, I. Blech, D. Gratias, and J.W. Cahn. Metallic phase with long-range orientational order and no translational symmetry. *Phys. Rev. Lett.*, 53 :1951, 1984.
- [126] L. Chow and K.H. Guenther. Critical field patterns in optical Fibonacci multilayers. *J. Opt. Soc. Am. A*, 10 :2231, 1993.
- [127] L. Dal Negro, C.J. Oton, Z. Gaburro, L. Pavesi, P. Johnson, A. Lagendijk, R. Righini, M. Colocci, and D.S. Wiersma. Light transport through the band-edge states of Fibonacci quasicrystals. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :055501, 2003.
- [128] M. Notomi, H. Suzuki, T. Tamamura, and K. Edagawa. Lasing action due to the two-dimensional quasiperiodicity of photonic quasicrystals with a Penrose lattice. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :123906, 2004.
- [129] A. Della Villa, S. Enoch, G. Tayeb, V. Pierro, V. Galdi, and F. Capolino. Band gap formation and multiple scattering in photonic quasicrystals with a Penrose-type lattice. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :183903, 2005.
- [130] B. Freedman, G. Bartal, M. Segev, R. Lifshitz, D.N. Christodoulides, and J.W. Fleischer. Wave and defect dynamics in nonlinear photonic quasicrystals. *Nature*, 440 :1166, 2006.
- [131] M. Sun, J. Tian, Z.-Y. Li, B.-Y. Cheng, D.-Z. Zhang, A.-Z. Jin, and H.-F. Yang. The role of periodicity in enhanced transmission through subwavelength hole arrays. *Chin. Phys. Lett.*, 23 :486, 2006.

- [132] T. Janssen. Aperiodic crystals : a contradictio in terminis? *Phys. Rep.*, 168 :55, 1988.
- [133] P.J. Lu and P.J. Steinhardt. Decagonal and quasi-crystalline tilings in medieval islamic architecture. *Science*, 315 :1106, 2007.
- [134] D. Levine and P.J. Steinhardt. Quasicrystals. I. Definition and structure. *Phys. Rev. B*, 34 :596, 1986.
- [135] M.A. Kaliteevski, S. Brand, R.A. Abram, T.F. Krauss, R. DeLa Rue, and P. Millar. Two-dimensional Penrose-tiled photonic quasicrystals : from diffraction pattern to band structure. *Nanotechnology*, 11 :274, 2000.
- [136] F. Przybilla, C. Genet, and T.W. Ebbesen. Enhanced transmission through Penrose subwavelength hole arrays. *Appl. Phys. Lett.*, 89 :121115, 2006.
- [137] T. Matsui, A. Agrawal, A. Nahata, and Z.V. Vardeny. Transmission resonances through aperiodic arrays of subwavelength apertures. *Nature*, 446 :517, 2007.
- [138] N. Papasimakis, V. A. Fedotov, A. S. Schwanecke, N. I. Zheludev, and F. J. García de Abajo. Enhanced microwave transmission through quasicrystal hole arrays. *Appl. Phys. Lett.*, 91 :081503, 2007.
- [139] A. Agrawal, T. Matsui, Z.V. Vardeny, and A. Nahata. Terahertz transmission properties of quasiperiodic and aperiodic aperture arrays. *J. Opt. Soc. Am. B*, 24 :2545, 2007.
- [140] D. Pacifici, H.J. Lezec, L.A. Sweatlock, R.J. Walters, and H.A. Atwater. Universal optical transmission features in periodic and quasiperiodic hole arrays. *Opt. Express*, 16 :9222, 2008.
- [141] J.Q. Li, W.Q. Yang, Y.T. Zhang, Q.J. Wang, C.P. Huang, and Y.Y. Zhu. Optical transmission through gold film with Archimedean-like subwavelength hole arrays. *J. Appl. Phys.*, 101 :073505, 2007.
- [142] J. Bravo-Abad, A.I. Fernández-Domínguez, F.J. García-Vidal, and L. Martín-Moreno. Theory of extraordinary transmission of light through quasiperiodic arrays of subwavelength holes. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :203905, 2007.
- [143] P. Marthandam and R. Gordon. Polarization-controlled diffraction from a quasicrystal nanohole array in a gold film. *J. Opt. A : Pure Appl. Op.*, 101 :073505, 2007.

- [144] F.M. Huang, T.S. Kao, V.A. Fedotov, Y. Chen, and N.I. Zheludev. Nanohole array as a lens. *Nano Lett.*, 8 :2469, 2008.



# Liste des communications

## Publications

1. F. Przybilla, A. Degiron, J.Y. Laluet, C. Genet and T.W. Ebbesen. Optical transmission in perforated noble and transition metal films. *J. Opt. A : Pure Appl. Op.*, 8 :458, 2006.
2. J. Bravo-Abad, A. Degiron, F. Przybilla, C. Genet, F.J. García-Vidal, L. Martín-Moreno and T.W. Ebbesen. How light emerges from an illuminated array of subwavelength holes. *Nature Physics*, 2 :120, 2006.
3. F. Przybilla, C. Genet and T.W. Ebbesen. Enhanced transmission through Penrose subwavelength hole arrays. *Appl. Phys. Lett.*, 89 :121115, 2006.
4. F. Przybilla, A. Degiron, C. Genet, T.W. Ebbesen, F. de León-Pérez, J. Bravo-Abad, F.J. García-Vidal and L. Martín-Moreno. Efficiency and finite size effects in enhanced transmission through subwavelength apertures. *Opt. Express*, 16 :9571, 2008.

## Communications orales

1. F. Przybilla, C. Genet and T.W. Ebbesen. Enhanced transmission through Penrose subwavelength hole arrays. European Materials Research Society (E-MRS) Spring Meeting, Strasbourg, France (May-June 2007).
2. F. Przybilla, C. Genet and T.W. Ebbesen. Enhanced transmission : size effects and efficiency. Réunion sur la thématique « Nanooptique » du Programme Grand Est de Recherche en Nanosciences, Troyes, France (April 2008).

## Communications par affiches

1. F. Przybilla, C. Genet and T.W. Ebbesen. Enhanced transmission through Penrose subwavelength hole arrays. Third International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP3), Dijon, France (June 2007).
2. F. Przybilla, C. Genet and T.W. Ebbesen. Enhanced transmission through Penrose subwavelength hole arrays. Trends in Materials and Nanosciences (TMN), Strasbourg, France (November 2006).
3. F. Przybilla, A. Degiron, J.-Y. Laluet, C. Genet and T.W. Ebbesen. Enhanced optical transmission through arrays of subwavelength apertures in noble and transition metals. Neuvième colloque sur les lasers et l'optique quantique (COLOQ9), Dijon, France (September 2005).
4. F. Przybilla, A. Degiron, J.-Y. Laluet, C. Genet and T.W. Ebbesen. Enhanced optical transmission through arrays of subwavelength apertures in noble and transition metals. Second International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP2), Graz, Austria (May 2005).

## Reproduction des articles

Le lecteur trouvera ci-dessous la reproduction des principaux articles publiés au cours de cette thèse.

*Signalement bibliographique ajouté par le :*

**UNIVERSITÉ DE STRASBOURG**  
**Service Commun de Documentation**

**Optical transmission in perforated noble and transition metal film**

F. PRZYBILLA, A. DEGIRON, J.-Y. LALUET, C. GENET and T. W. EBBESEN

**Journal of Optics A: pure and applied optics, 2006, vol. 8, n° 5, pages 458-463**

**Pages 123-128 :**

La publication présentée ici dans la thèse est soumise à des droits détenus par un éditeur commercial.

Les utilisateurs de l'UdS peuvent consulter cette publication sur le site de l'éditeur :

<http://dx.doi.org/10.1088/1464-4258/8/5/015>

La version imprimée de cette thèse peut être consultée à la bibliothèque ou dans un autre établissement via une demande de prêt entre bibliothèques (PEB) auprès de nos services :

<http://www-sicd.u-strasbg.fr/services/peb/>

*Signalement bibliographique ajouté par le :*

**UNIVERSITÉ DE STRASBOURG**  
**Service Commun de Documentation**

**Efficiency and finite size effects in enhanced transmission through subwavelength apertures**

F. PRZYBILLA, A. DEGIRON, C. GENET, T.W. EBBESEN, F. de LÉON-PÉREZ, J. BRAVO-ABAD, F. J.GARCIA-VIDAL, L. MARTIN-MORENO

**Optics express, 2008, vol. 16, n° 13**

© 2008 Optical Society of America

**Pages 129-137 :**

La publication présentée ici dans la thèse est soumise à des droits détenus par un éditeur commercial.

La version imprimée de cette thèse peut être consultée à la bibliothèque ou dans un autre établissement via une demande de prêt entre bibliothèques (PEB) auprès de nos services :

<http://www-sicd.u-strasbg.fr/services/peb/>



## Enhanced transmission through Penrose subwavelength hole arrays

F. Przybilla, C. Genet,<sup>a)</sup> and T. W. Ebbesen

ISIS, Université Louis Pasteur-CNRS, UMR 7006, 8 Allée Gaspard Monge, 67000 Strasbourg, France

(Received 19 June 2006; accepted 27 July 2006; published online 20 September 2006)

Transmission through Penrose subwavelength hole arrays is studied in the optical regime. The loss of strict periodicity does not prevent surface plasmon modes from being excited. The authors study the spectral evolutions of these modes by increasing both the spacings between the holes in a commensurate way and the size of the array. When compared to the situation of a periodic array, their measurements show a reduction of the propagation length of the surface modes, most likely related to the influence of multiple scattering, which lowers the contribution of long-range interactions in the transmission spectra. © 2006 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.2355450]

The surprising optical properties of periodic two-dimensional (2D) subwavelength hole arrays in metallic films have been demonstrated to be intimately related to the excitation of sharp surface plasmon (SP) modes on the metallic surface.<sup>1</sup> At normal incidence and under plane wave illumination, enhanced optical modes of transmission are determined from Bragg momentum matching conditions  $\mathbf{k}_{\text{SP}} = \boldsymbol{\alpha}$  between reciprocal vectors  $\boldsymbol{\alpha}$  of the periodic array and SP wave vector  $k_{\text{SP}} = 2\pi/\lambda(\varepsilon_1\varepsilon_2/\varepsilon_1 + \varepsilon_2)^{1/2}$  on a smooth interface between dielectric and metal films of respective permittivities  $\varepsilon_1$  and  $\varepsilon_2$ . Accordingly, periodicity from which stems the definition of the reciprocal space of the lattice and corresponding spatial symmetries appear essential for exciting and controlling resonant SP modes on the surface of the array.<sup>2-4</sup> However, is periodicity necessary for such resonant optical effects?

In order to answer this question, we have designed hole arrays as 2D Penrose tiles. These tiles are built on the symmetry of the pentagon which is known since Bravais to be incompatible with translational invariance. Still, they can exactly pave the plane with long-range and strong orientational orders. Such structures are called *quasiperiodic* and, lying outside the constraints of periodicity, they induce unique physical properties. These properties have been extensively studied in condensed matter physics.<sup>5</sup> Recently, the interest has broadened to one-dimensional and 2D photonic quasiperiodic systems as a new class of optical devices.<sup>6-12</sup>

Our 2D Penrose tiles are composed of two different types of rhombus, with equal edges  $P$  but different angles— $36^\circ$  for the thin rhombus and  $72^\circ$  for the fat one—that are matched to pave all the 2D plane with a fivefold spatial symmetry.<sup>13</sup> We have fabricated Penrose subwavelength hole arrays using a Ga<sup>+</sup> focused ion beam (FIB). Figure 1(a) displays a typical transmission spectrum measured through a Penrose tile, shown in the inset, illuminated by a collimated incoherent white light. Even though periodicity is absent, well defined peaks of enhanced transmission which must be assigned clearly appear. But in contrast to periodic arrays, a Penrose tile has a dense Fourier space. This prevents the possible definition of the smallest reciprocal vector, necessary for straightforwardly sorting out resonant modes of the structure. However, the calculated Fourier transform of the

tile, shown in Fig. 1(b), displays Bragg peaks more intensely than others and allows for a practical indexation approach.<sup>14</sup> In real space, a Penrose tile is generated on five basic lengths  $a_{i=1,\dots,5}$ : edges  $i=1$ , and long and short diagonals for the fat rhombus (respectively,  $i=2$  and  $i=3$ ) and for the thin one ( $i=4$  and  $i=5$ ), falling in a pentagonal symmetry. For each of these lengths, we define a set of “practical” reciprocal vectors of magnitude  $\alpha_{i=1,\dots,5} = 2\pi/(a_i\tau \sin \pi/5)$ . Each set will define a 2D Cartesian ( $\mathbf{i}, \mathbf{j}$ ) reciprocal space as

$$\boldsymbol{\alpha}_{i=1,\dots,5}^n = \pm \alpha_i \cos \frac{2n\pi}{5} \mathbf{i} \pm \alpha_i \sin \frac{2n\pi}{5} \mathbf{j}. \quad (1)$$

With  $n$ , integer, going from 0 to 4, this reciprocal space has the expected icosahedral symmetry. The sharp and most intense diffraction peaks that appear on the Fourier transform of the Penrose tile are related to these reciprocal vector sets, following standard Bragg diffraction conditions. The Fourier spectrum can be understood by considering only fundamental orders. However, constructive interferences do not necessarily lead to visible Bragg peaks: the Fourier coefficient of the  $\boldsymbol{\alpha}_3$  component displays in Fig. 1(b) a magnitude much smaller than the other components. Transmission resonances can now be assigned by simply inserting Eq. (1) into the Bragg condition. It turns out that the two main resonances seen on the spectrum in Fig. 1(a), centered at 470 and at 530 nm, are to be related to vectors  $\boldsymbol{\alpha}_1$  and  $\boldsymbol{\alpha}_3$ , respectively. Here, the corresponding SP modes are excited on the air-metal interface while the doublet at larger wavelength simply consists of the same resonances, but excited on the glass-metal interface.

In order to reveal mechanisms that are specific to quasiperiodicity, we study the evolution of the resonances when the lengths in the quasiperiodic structure are increased commensurably with hole diameter fixed to 150 nm. We concentrate on the dispersions of the maxima of transmission associated with  $\boldsymbol{\alpha}_1$  and  $\boldsymbol{\alpha}_3$  resonances on both array interfaces, for rhombus edges  $P$  ranging from 350 to 900 nm. The data plotted in Fig. 2 clearly show a radical difference from what has already been extensively observed on square arrays,<sup>15</sup> where indeed, resonance maxima closely follow Bragg conditions, given a constant redshift accounting for the scattering channel opened by the holes themselves, whether or not their diameter is kept constant. These deviations can probably be attributed to multiple scattering effects.<sup>9</sup> Indeed, pe-

<sup>a)</sup>Electronic mail: genet@isis-ulp.org

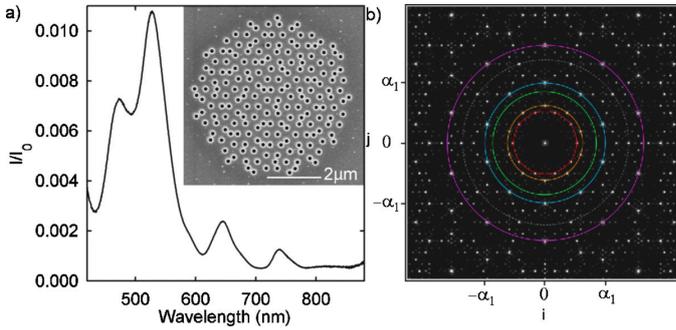


FIG. 1. (Color) (a) Optical transmission spectrum of a Penrose array with rhombus edge  $P=450$  nm and hole diameter  $d=150$  nm. The transmitted intensity  $I$  is normalized to the incident one  $I_0$ . The inset is a scanning electron microscopy image of the array milled through a 300 nm thick Ag film. (b) Fourier transform of a whole Penrose tile. Color circles correspond to the norms of the reciprocal vectors defined in the text, from red to violet with decreasing basic length  $a_i$ . Green and blue circles correspond, respectively, to  $\alpha_3$  and  $\alpha_1$  modes. The dotted gray circle is determined from the linear combination  $\alpha_3^0 + \alpha_3^4$ .

riodic arrays display lattice planes of holes equally spaced, between which constructive interferences can be defined. This is the reason why the Bragg law, as a single scattering term, is effective on a periodic array, even though holes milled through metal films cannot be considered as weak scatters.<sup>16</sup> This succession of lattice plane is lost on a quasi-periodic array. It is the scattering of the surface modes at the level of individual holes that matters in this case, introducing higher scattering terms in the SP dynamics.

These differences in scattering dynamics can be further explored when looking at transmission spectra through both Penrose and square arrays in Ag and varying the number of holes  $N$  of each array. Precisely, we compare the respective evolution of the Penrose  $\alpha_3$  mode and of the fundamental (lowest energy) mode of a square array, chosen in such a way that they occur at the same wavelength. Each array was then covered with an appropriate index matching fluid tuned to the permittivity of the glass substrate, a configuration that optimizes transmission efficiencies.<sup>17</sup> We compare for these resonances full widths at half maximum (FWHMs) and peak heights. The results are gathered in Fig. 3, where again quasi-periodic and periodic arrays can be clearly distinguished. For the square array, FWHMs decrease towards a horizontal asymptote as  $N$  is increased. This asymptote corresponds to both internal (absorption inside the metal) and radiative losses. These losses correspond to a propagation length of the SP over the array of  $\sim 3.5 \mu\text{m}$ , assuming an exponential decay of the mode.<sup>18</sup> The FWHMs narrow as  $1/\sqrt{N}$ , in agreement with grating law given the fact that the fundamental mode excited on a square array only propagates along a principle axis of the array. Such a simple law is not obeyed by the  $\alpha_3$  FWHMs which decrease more slowly and eventually reach a plateau at larger values relative to the square array.

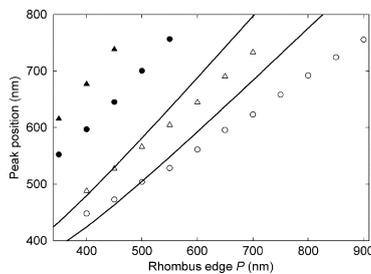


FIG. 2. Maxima dispersion of modes  $\alpha_1$  (open circles) and  $\alpha_3$  (open triangles) as a function of  $P$ . The modes are excited on the air-metal interface of a Penrose tile with  $d=150$  nm kept constant. The solid lines give the Bragg positions for these modes. Filled circles and triangles correspond to the same modes excited on the glass-metal interface.

Given that internal damping terms are the same for both arrays, and that the fabrication has been carefully checked to be at the same level of precision, the increase in FWHMs for the Penrose array shows that quasiperiodicity amounts to an additional reduction of the SP mean free path ( $\sim 2.3 \mu\text{m}$ ). This is consistent with a multiple scattering process which induces a complex propagation for the surface modes. Thus, SP modes are more localized over the Penrose array.

There is a close correlation between FWHMs and enhanced transmission intensities. These intensities  $I_N$  have been normalized to the incident intensity  $I_0$  and normalized to hole filling factors for each array, respectively. These factors are rather slow varying functions of  $N$ , with the Penrose filling factor being slightly larger than the square filling factor for  $N \geq 100$ . Figure 3 clearly shows that transmission is better enhanced (at least by a factor of 3) through a square array than through a Penrose tile. For the latter,  $I_N$  saturates as soon as 140 holes are milled, defining an array of radius  $\sim 2.7 \mu\text{m}$ . This is much faster than that for the square array and consistent with the maximum propagation length of the  $\alpha_3$  SP mode over the Penrose array (see above). For the periodic array, the saturation in transmission starts with larger arrays ( $\sim 300$  holes) corresponding to a square array of edge of the order of  $7 \mu\text{m}$ , which is twice the propagation length of the SP mode as expected. Far from saturation, i.e. for small  $N$ , quasiperiodic transmission spectra are highly sensitive to particular local arrangement of holes. Figures 4(a) and 4(b) show substructures with different origins taken on the same whole Penrose array. The pentagonal structure [Fig. 4(b)] is highly symmetric and characterized by a rather well defined Fourier transform. The  $\alpha_3$  mode is dominating,

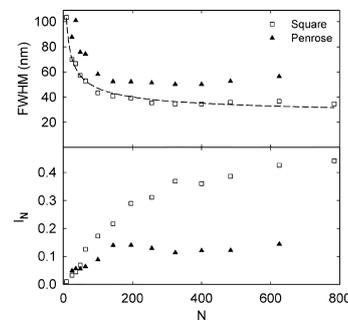


FIG. 3. FWHM and normalized transmitted intensities  $I_N$ , as a function of the number of holes  $N$  milled through the metal film, of index matched resonance  $\alpha_3$  of a Penrose tile ( $P=450$  nm)—filled triangles—and lowest energy resonance of the corresponding square array—open squares. The dashed line in the FWHM frame is a  $1/\sqrt{N}$  fit.

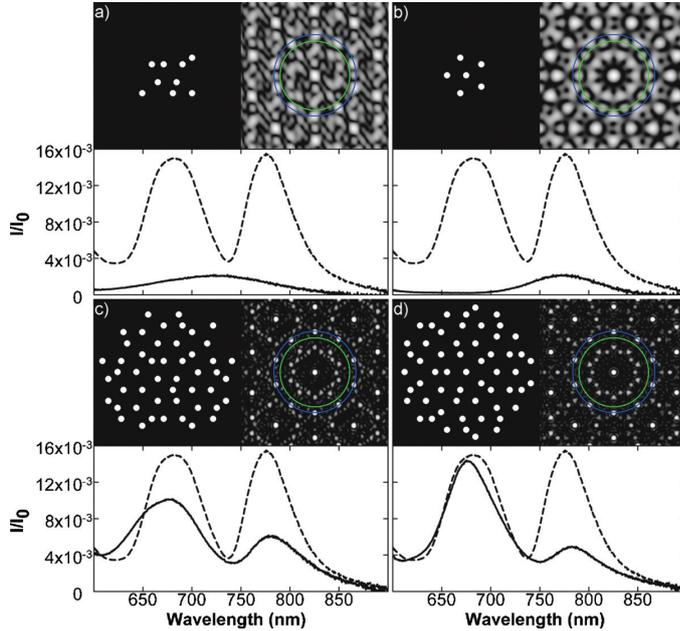


FIG. 4. (Color) Substructures extracted from the same Penrose tile ( $P=450$  nm and  $d=150$  nm), taking a given origin for quadrants (a) and (c) and a different origin for quadrants (b) and (d). The Fourier transform of each structure is calculated and shown on its right, with  $\alpha_1$  and  $\alpha_3$  mode positions indicated by their corresponding Bragg circle. Experimental optical spectra are also displayed. The saturated spectrum of a large Penrose array (long dashed) is repeated on each spectrum.

and accordingly shows up in the optical transmission spectrum. On the contrary, the Fourier transform of the rather asymmetric cluster of nine holes is not yet well defined, giving a rather broad and nonresonant optical spectrum [Fig. 4(a)]. These local effects should be kept in mind since they might give the biased impression that the late emergence ( $N \geq 25$ ) of the  $\alpha_3$  mode in Fig. 3 is to be related to long-range interaction. Had we started from the origin of Fig. 4(b) and not as we did from the origin of Fig. 4(a), a well defined peak would have already appeared for smaller  $N$ . However, as  $N$  increases, the strong orientational order of a Penrose tile rapidly cancels out these differences, providing Fourier transforms independent of a chosen origin. This is illustrated by Figs. 4(c) and 4(d) where the Fourier transforms of each substructure of about 50 holes already resemble the one of a very large tile. The two modes  $\alpha_1$  and  $\alpha_3$  are therefore optically well defined as soon as the array reaches a size of  $\sim 1.5 \mu\text{m}$ . Adding more holes should strongly narrow the resonances as a signature of long-range order. Experimentally though, amplitudes and FWHMs saturate because of the finite lifetime of excited SP modes. On a quasiperiodic array, these modes can only probe a relatively small number of holes. This is therefore an intrinsic limitation (typically of the order of  $2 \mu\text{m}$ ) put on the resolution one can reach on such system for probing long-range interactions.

We have seen that quasiperiodic metallic arrays of sub-wavelength holes show enhanced transmission peaks that are related to the Fourier space of the array. The scattering dynamics of the associated SP modes is different from what has been known on a periodic array as the loss of periodicity increases the localized character of SP modes. Accordingly, this issue deserves further attention. If orientational order takes over as the hole size increases, the relevance of long range interactions is diluted within the broad SP excitations. Such analysis should be carried out by implementing near- and far-field optical experiments to obtain a complete and detailed picture of surface waves dynamics in a quasiperiodic

structure. Very recently, theoretical studies along these lines have been reported.<sup>19</sup>

The authors thank the EC, Project No. FP6 NMP4-CT-2003-505699, for support.

- <sup>1</sup>T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi, T. Thio, and P. A. Wolff, *Nature (London)* **391**, 667 (1998).
- <sup>2</sup>E. Altewischer, M. P. van Exter, and J. P. Woerdman, *J. Opt. Soc. Am. B* **22**, 1731 (2005).
- <sup>3</sup>J.-C. Weeber, M. U. González, A.-L. Baudrion, and A. Dereux, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 221101 (2005).
- <sup>4</sup>A. Degiron and T. W. Ebbesen, *J. Opt. A, Pure Appl. Opt.* **7**, S90 (2005).
- <sup>5</sup>C. Janot, *Quasicrystals: A Primer*, 2nd ed. (Clarendon, Oxford, 1994).
- <sup>6</sup>L. Chow and K. H. Guenther, *J. Opt. Soc. Am. A* **10**, 2231 (1993).
- <sup>7</sup>L. Dal Negro, C. J. Oton, Z. Gaburro, L. Pavesi, P. Johnson, A. Lagendijk, R. Righini, M. Colocci, and D. S. Wiersma, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 055501 (2003).
- <sup>8</sup>M. Notomi, H. Suzuki, T. Tamamura, and K. Edagawa, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 123906 (2004).
- <sup>9</sup>A. Della Villa, S. Enoch, G. Tayeb, V. Pierro, V. Galdi, and F. Capolino, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 183903 (2005).
- <sup>10</sup>B. Freedman, G. Bartal, M. Segev, R. Lifshitz, D. N. Christodoulides, and J. W. Fleischer, *Nature (London)* **440**, 1166 (2006).
- <sup>11</sup>M. Sun, J. Tian, Z.-Y. Li, B.-Y. Cheng, D.-Z. Zhang, A.-Z. Jin, and H.-F. Yang, *Chin. Phys. Lett.* **23**, 486 (2006).
- <sup>12</sup>A. S. Schwanecke, N. Papisimakis, V. A. Fedotov, F. Huang, Y. Cheng, F. J. García de Abajo, and N. I. Zheludev, *OSA Nanophotonics Topical Meeting*, 26–28 April 2006 (unpublished).
- <sup>13</sup>K. Ingersent and P. J. Steinhart, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2034 (1990).
- <sup>14</sup>M. A. Kaliteevski, S. Brand, R. A. Abram, T. F. Krauss, R. DeLa Rue, and P. Millar, *Nanotechnology* **11**, 274 (2000).
- <sup>15</sup>F. Przybilla, A. Degiron, J.-Y. Laluet, C. Genet, and T. W. Ebbesen, *J. Opt. A, Pure Appl. Opt.* **8**, 458 (2006).
- <sup>16</sup>M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, 7th ed. (Cambridge University Press, Cambridge, 2001), Chap. 13, p. 695.
- <sup>17</sup>A. Krishnan, T. Thio, T. J. Kim, H. J. Lezec, T. W. Ebbesen, P. A. Wolff, J. Pendry, L. Martín-Moreno, and F. J. García-Vidal, *Opt. Commun.* **200**, 1 (2001).
- <sup>18</sup>D. S. Kim, S. C. Hohng, V. Malyarchuk, Y. C. Yoon, Y. H. Ahn, K. J. Yee, J. W. Park, J. Kim, Q. H. Park, and C. Lienau, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 143901 (2003).
- <sup>19</sup>J. Bravo-Abad, F. J. García-Vidal, and L. Martín-Moreno, e-print cond-mat/0606121.